SÉRIE VIII. — TOME VIII. N° 6. JUIN 1947.

LE JOURNAL DE PHYSIQUE
ET
LE RADIUM

REMARQUES SUR LA THÉORIE DU NOYAU

Par LÉON BLOCH.
Laboratoire de Physique de l'École Normale Supérieure.

Sommaire. — Les théories mésoniques du noyau développées jusqu'à présent mélangent les formules classiques (équations de Lagrange) et les formules de Mécanique ondulatoire.

En poussant à fond l'analogie entre le champ mésonique et le champ électromagnétique, on obtient, à partir d'hypothèses plus simples, qui ne font intervenir qu'une seule sorte de mésons, les mésons vectoriels, une théorie cohérente et très souple qui se prête à l'élimination éventuelle des difficultés inhérentes aux forces non centrales.

Les théories modernes du noyau se fondent sur l'idée que les forces intranucléaires proviennent de l'interaction entre nucléons et champ mésonique. Le calcul de cette interaction repose sur diverses hypothèses, dont quelques-unes semblent peu satisfaisantes :

1° L'homologie entre champ mésonique et champ électromagnétique n'est pas respectée, rigoureusement. Les équations

$$\dot{D} = -\dot{A} - \operatorname{grad} V,$$
$$E = -k_0^2 A + \operatorname{rot} H - J,$$
$$\operatorname{div} E = -k_0^2 V + \rho$$

n'ont leur homologue exact dans la théorie classique de Maxwell-Lorentz (aux termes en k_0^2 près) que si l'on *intervertit les symboles D et E*. Ceci entraîne le *changement de signe de P* dans la formule

$$D = E + P.$$

Les équations de Maxwell-Lorentz sont d'accord avec l'expérience.

2° La théorie généralement admise implique un mélange de formules classiques (équations de Lagrange) et de formules empruntées à la Mécanique ondulatoire (équation de Dirac). Il semble plus homogène de se placer au *point de vue classique pur*, quitte à interpréter éventuellement les résultats à une approximation meilleure, qui peut être demandée à la Mécanique ondulatoire.

3° La théorie généralement admise pose que « les nucléons sont des corpuscules de spin $\frac{1}{2}$ obéissant aux équations de Dirac : du moins nous le supposons ». Cette hypothèse est très difficile à concilier avec le fait que les protons et les neutrons n'ont pas un moment magnétique égal au *petit magnéton de Bohr*.

4° Le problème de la structure des noyaux stables étant un problème essentiellement *statique* (vitesses des nucléons négligeables), on lui applique deux des résultats valables dans le cas statique pour l'électron de Dirac, savoir :

$$j = 0, \qquad P = 0.$$

Même si l'on admet la légitimité de cette extension (qui paraît douteuse), il semble que la conclusion $j = 0$ soit inacceptable. Pour l'électron de Dirac, le courant J est le *courant total* (que la formule de Gordon décompose en une somme de trois termes : $J = j + j' + j''$). Pour le champ mésonique, le courant j est le *courant de convection seul*, correspondant au courant j de la formule de Gordon. Il est donc arbitraire d'assimiler j à J et d'écrire $j = 0$. L'homologie correcte dans le cas statique conduirait

à écrire

$$j + \text{rot}\, M = 0.$$

5° En posant $P = 0$, on fait, sous réserve d'analogie, un usage correct de l'équation de Dirac. Mais cette analogie ne nous paraît pas une justification suffisante. Il semble permis de faire l'hypothèse que les nucléons, pour qui $M \neq 0$, peuvent aussi avoir $P \neq 0$. L'existence très probable d'un *moment électrique quadripolaire* du deutéron plaide fortement en faveur de cette hypothèse.

6° Malgré toutes les conventions de base, la théorie généralement admise échoue lorsqu'il s'agit d'expliquer la structure du deutéron à l'aide des seuls *mésons vectoriels*. Elle est obligée d'avoir recours à une compensation partielle par *mésons pseudoscalaires*, qui est intéressante, mais qui ne semble pas démontrée. Nous pensons qu'il serait plus simple de ne faire appel qu'à une sorte de mésons.

Guidé par les remarques qui précèdent, nous avons recherché s'il n'est pas possible de pousser plus loin qu'on ne l'a fait jusqu'ici l'analogie du champ mésonique et du champ électromagnétique.

Nous considérons un noyau stable comme l'analogue d'un système électromagnétique isolé. Isolement signifie ici existence d'une énergie totale *constante*, absence de tout *rayonnement* traversant la surface Σ du système.

Les conditions nécessaires pour qu'un système soit isolé sont de deux sortes :

1° E, H, ou mieux V, A nuls à l'extérieur de la surface Σ;

2° $\dot{\rho}$, $\dot{j}$, $\dot{P}$, $\dot{M}$ nuls à l'intérieur de Σ.

Nous nous limitons, comme le fait la théorie ordinaire, à l'étude des états *statiques*, mais ces états sont définis autrement qu'elle ne le fait.

Les conditions nécessaires pour qu'un système soit *statique* sont simplement :

$\dot{E}$, $\dot{H}$, ou mieux $\dot{V}$, $\dot{A}$ nuls à l'intérieur de la surface Σ (et non pas $j = 0$, $P = 0$). Les grandeurs j et P peuvent être différentes de zéro pourvu qu'elles soient constantes.

Si nous nous plaçons dans les conditions qui viennent d'être indiquées, il est facile de calculer, en restant dans le domaine des équations classiques, l'énergie H d'un *système électromagnétique isolé*. On trouve

$$H = \frac{1}{2}\int [\Gamma + V(\rho + \rho') - A(j + j') + M^2 - P^2]\, d\tau \quad (1)$$

en posant

$$\Gamma = \frac{1}{c^2}\left[-A\frac{\partial^2 A}{\partial t^2} + \left(\frac{\partial A}{\partial t}\right)^2 + V\frac{\partial^2 V}{\partial t^2} - \left(\frac{\partial V}{\partial t}\right)^2\right], \quad (2)$$

$$\rho' = -\,\text{div}\, P, \quad (3)$$

$$j' = \text{rot}\, M. \quad (4)$$

La formule (1) demeure vraie pour un système *mésonique* isolé.

Le terme $\frac{1}{2}\Gamma$ représente l'*énergie propre du champ*; $\frac{1}{2}(M^2 - P^2)$ est une partie de l'*énergie propre de la matière*; le terme le plus intéressant est le terme

$$H' = \frac{1}{2}\int [V(\rho + \rho') - A(j + j')]\, d\tau \quad (5)$$

qui contient l'*énergie d'interaction*.

Le cas statique se caractérise simplement par la condition $\Gamma = 0$.

Le calcul effectif de l'énergie H' se fait aisément (dans le cas statique), en utilisant les équations des potentiels

$$V = \int \frac{\rho + \rho'}{r}\, e^{-k_0 r}\, d\tau, \qquad A = \int \frac{j + j'}{r}\, e^{-k_0 r}\, d\tau. \quad (6)$$

En vue de l'application à la théorie du noyau, nous supposerons que ρ, ρ', j, j' sont nuls à l'extérieur des diverses surfaces limitant les volumes des nucléons. Si ces volumes sont infiniment petits, il arrivera que, pour $r = 0$, certains éléments de l'énergie deviennent infinis, comme il arrive toujours lorsqu'on passe à la limite de centres quasi ponctuels. Mais cette circonstance n'a rien qui puisse nous inquiéter, puisqu'elle affecte uniquement des termes qui rentreront dans l'énergie propre des nucléons : nous garderons seulement dans H' les termes d'*interaction vraie*.

Admettons pour plus de simplicité qu'on n'ait affaire qu'à deux nucléons 1 et 2. Posons

$$\left.\begin{array}{ll} (\rho) = \int \rho\, dv, & (\rho') = \int \rho'\, dv; \\ (j) = \int j\, dv, & (j') = \int j'\, dv, \end{array}\right\} \quad (7)$$

les intégrales étant étendues au volume très petit de chaque nucléon, et les symboles ci-dessus devant être munis de l'indice 1, ou de l'indice 2, selon qu'ils se rapportent à l'un ou à l'autre nucléon. Les symboles (ρ) et (j') sont à rapprocher de ceux que la théorie ordinaire désigne par g_1 et g_2/k_0. Si l'on tient compte de (6), l'énergie d'interaction se présente alors sous la forme suivante (en omettant les termes infinis)

$$H' = [(\rho_1) + (\rho'_1)][(\rho_2) + (\rho'_2)] - [(j_1) + (j'_1)][(j_2) + (j'_2)]\frac{e^{-k_0 r}}{r}. \quad (8)$$

On sait que ρ et j constituent un quadrivecteur. Il en est donc de même de (ρ) et (j), ainsi que de (ρ') et (j') d'après (6). Si donc nous posons

$$\left.\begin{array}{r} (\rho) + (\rho') = R, \\ (j) + (j') = J, \\ (R, J_x, J_y, J_z) = I, \end{array}\right\} \quad (9)$$

l'énergie H' prend la forme condensée

$$H' = (I_1 I_2) \frac{e^{-k_0 r}}{r}. \qquad (10)$$

Sa valeur dépend d'une part du produit scalaire $(I_1\, I_2)$, d'autre part de la grandeur r (distance qui sépare les deux nucléons). On reconnaît l'analogie des formules (8) et (10) avec les formules classiques d'interaction entre deux charges ponctuelles et deux éléments de courant. A cause du caractère vectoriel de $(j) + (j')$, les forces d'interaction cessent, au moins en partie, d'être des forces centrales.

Nous ne connaissons pas la valeur de r correspondant à l'équilibre des deux nucléons, mais nous savons, au moins dans le cas du deutéron (nucléon 1 = neutron, nucléon 2 = proton) quel est son ordre de grandeur ($r = 2{,}8.10^{-13}$). Sa valeur n'est peut-être pas la même pour l'état normal ^3S et pour l'état virtuel $'S$; nous nous conformons à la théorie ordinaire en supposant que la différence est négligeable. La valeur vraie de r est celle qui correspond à un minimum de H' (si un tel minimum existe, c'est-à-dire s'il existe une configuration stable des deux nucléons). Nous nous trouvons placés ici devant un problème très voisin de celui de l'équilibre stable d'une molécule diatomique. On sait qu'un tel équilibre n'est possible que si, aux forces attractives du type quasi élastique qui s'exercent à grande distance, se superposent aux très courtes distances des forces répulsives extrêmement intenses qui s'opposent à l'interpénétration des atomes. Du moment que nous assignons à nos deux nucléons des dimensions très petites, mais finies, nous devons aussi veiller à ce qu'ils ne puissent pas se pénétrer l'un l'autre et perdre de ce fait leur individualité. Ceci exige l'hypothèse qu'aux forces mésoniques s'exerçant aux distances nucléaires se superposent aux distances encore plus courtes des forces répulsives très intenses d'origine non mésonique. La distance d'équilibre r reste alors finie et nous n'avons pas à rechercher d'artifice de calcul (coupure) empêchant r de tendre vers zéro.

Portons désormais notre attention sur le produit scalaire $(I_1\, I_2)$. La configuration la plus stable du système sera celle où ce produit aura la plus grande valeur négative. Si nous supposons I_1 et I_2 donnés, il faut que ces quadrivecteurs soient parallèles et de sens contraires. Reprenant le langage de l'espace à trois dimensions, nous dirons que

$$[(\rho_1) + (\rho'_1)]\,[(\rho_2) + (\rho'_2)] \qquad (11)$$

doit tendre à être négatif et aussi grand que possible en valeur absolue,

$$[(j_1) + (j'_1)]\,[(j_2) + (j'_2)] \qquad (12)$$

doit tendre à être positif et aussi grand que possible.

Il est évident que si les deux nucléons nous sont donnés par la répartition de ρ, j, P et M à leur intérieur, les scalaires (ρ_1) et (ρ_2) sont bien déterminés. Mais, même si nous admettons que les vecteurs j, P, M sont rigidement liés entre eux, le changement d'orientation d'un nucléon entraîne une variation de $\rho' = -$ div P et de $j' =$ rot M, par suite une variation des grandeurs (11) et (12). La recherche des valeurs d'équilibre ne semble pas possible dans le cas général, tant qu'on ignore la répartition exacte des P et des M.

Un cas particulier qui prête à des hypothèses plausibles est celui où les deux nucléons 1 et 2 sont *de même nature* (ou bien protons ou bien neutrons), c'est-à-dire ont même volume infinitésimal et à l'intérieur de ce volume même répartition de ρ, j, P, M. On peut alors faire appel à des considérations de symétrie pour supposer que les vecteurs (j) et (j') sont pour les deux nucléons disposés parallèlement ou antiparallèlement par rapport à r. Si cette circonstance est réalisée, les forces pseudo-électriques résultant du potentiel vecteur A redeviennent des forces centrales, sans qu'il soit nécessaire d'avoir recours, comme le fait la théorie ordinaire, à une approximation fondée sur un calcul de moyennes.

Si les deux nucléons à l'état d'équilibre sont orientés mutuellement au parallélisme, la valeur de H' se simplifie et devient (en supprimant les indices puisque les deux nucléons sont identiques)

$$H' = \left\{ [(\rho) + (\rho')]^2 - [(j) + (j')]^2 \right\} \frac{e^{-k_0 r}}{r}. \qquad (13)$$

On voit que la relation (douteuse) signalée plus haut

$$j + \text{rot}\, M = 0, \qquad (14)$$

laquelle entraîne

$$(j) + (j') = 0, \qquad (15)$$

impliquerait pour H' une valeur essentiellement positive

$$[(\rho) + (\rho')]^2. \qquad (16)$$

On peut donc dire que, dans ces conditions, le « biproton » et le « bineutron » seraient essentiellement instables.

Si nous demeurons dans le cas général, nous voyons qu'à cause du signe — l'énergie d'interaction peut, suivant les cas, être positive, nulle ou négative.

Nous pouvons, au moins théoriquement, comparer les valeurs de H' pour les deux positions (parallèle et antiparallèle) des nucléons. Si nous admettons que le passage de l'une de ces positions à l'autre change le signe de P et de M, donc celui de (ρ') et de (j'), nous avons à comparer l'expression (13) avec celle-ci :

$$H' = \left\{ [(\rho) - (\rho')]^2 - [(j) - (j')]^2 \right\} \frac{e^{-k_0 r}}{r} \qquad (17)$$

et la stabilité la plus grande appartiendra à cette

dernière configuration ou à la première selon que

$$(j)(j') < (\rho)(\rho') \qquad (18)$$

ou

$$(j)(j') > (\rho)(\rho'), \qquad (19)$$

c'est-à-dire selon que le quadrivecteur I sera du genre espace ou du genre temps.

Passons maintenant du cas qui vient d'être examiné (noyau hypothétique du biproton ou du bineutron) au cas du deutéron, dont l'existence est certaine. Deux remarques s'imposent.

1° L'expérience nous apprend que les moments magnétiques du proton et du neutron diffèrent notablement ($\mu_P = 2{,}785\ \mu_0$, $\mu_N = -1{,}935\ \mu_0$). Il en est donc probablement de même pour les valeurs de $(j') = (\text{rot}\ M)$. Le proton et le neutron ne sont pas des particules de même nature au sens qui a été défini plus haut; il faut attacher à chacun d'eux une valeur particulière de (j'), savoir (j'_P) ou (j'_N). Nous admettons jusqu'à preuve du contraire que $(j_P) = (j_N)$ et que $(\rho'_P) = (\rho'_N)$. Alors l'expression $[(j) + (j')]^2$ dans (13) doit être remplacée par

$$(j)^2 + (j)[(j'_P) + (j'_N)] + (j'_P)(j'_N). \qquad (20)$$

2° Si l'on convient de poser, dans le cas du proton $(\rho_P) = g$, dans le cas du neutron $(\rho_N) = 0$, il y a lieu de modifier aussi le premier terme de (13), qui devient

$$(\rho)(\rho') + (\rho')^2. \qquad (21)$$

Il paraît actuellement très difficile de contrôler la théorie à l'aide des seules données que nous possédons sur la stabilité relative du deutéron à l'état normal ^3S et à l'état virtuel ^1S. On peut demander une hypothèse de travail au fait expérimental que le moment magnétique du neutron est négatif (*voir* plus haut), c'est-à-dire dirigé en sens contraire du spin, l'inverse étant vrai pour le proton. Si l'on admet que les moments magnétiques sont portés par les mêmes axes que les spins, il s'ensuit que dans l'état ^1S, les vecteurs (j'_P) et (j'_N) sont de même sens, tandis que dans l'état ^3S ils sont de sens opposés. On conçoit qu'il en résulte une différence dans la valeur de H', mais le signe de cette différence ne paraît pas prévisible pour le moment. Le problème sera peut-être abordable le jour où nous serons fixés sur l'existence ou la non-existence du biproton et du bineutron. Rappelons d'ailleurs que les deux états ^1S et ^3S peuvent aussi différer par la valeur de (ρ'), grandeur que la théorie ordinaire suppose nulle arbitrairement.

Il faut ajouter que nous restons toujours libres de faire appel à une énergie d'échange due au « spin isotopique ».

En résumé, nous proposons pour la Physique nucléaire une théorie mésonique calquée exactement sur l'Électromagnétisme classique. Cette théorie élimine quelques-unes des imperfections provenant d'une application trop étroite des idées de Dirac et de l'emploi exclusif de la Mécanique ondulatoire.

Elle a l'avantage de ne faire intervenir qu'une sorte de mésons, les mésons vectoriels, et se prête à l'élimination éventuelle des difficultés inhérentes aux forces non centrales.

Elle fait état de quatre symboles tensoriels (ρ), (ρ'), (j), (j'), ce qui lui donne une faculté d'adaptation au moins égale à celle des théories mésoniques les plus générales.

Son principal inconvénient est que, par suite de cette liberté même, elle ne dispose pas d'un matériel de contrôle expérimental assez abondant pour permettre actuellement des vérifications quantitatives.

Cet article, écrit par M. Léon Bloch immédiatement avant sa mort survenue le 11 avril 1947, a été remis au *Journal de Physique* par Mme Eugène Bloch, belle-sœur de l'auteur, le 26 juillet 1947.

NOUVEAUX MODES DE FISSION DE L'URANIUM TRIPARTITION ET QUADRIPARTITION

Par TSIEN SAN-TSIANG*, HO ZAH-WEI*, R. CHASTEL et L. VIGNERON.
Laboratoire de Chimie Nucléaire du Collège de France.

Sommaire. — Utilisant la technique de la plaque photographique, nous avons mis en évidence la tripartition et la quadripartition du noyau composé $^{236}_{92}U$.

Dans le cas de la tripartition, les deux fragments lourds ont des parcours et des masses comparables à ceux qu'on observe dans la bipartition.

Le troisième fragment a le plus souvent une masse inférieure à 10, cependant, dans un cas nous avons observé la valeur 32. Le parcours du troisième fragment, exprimé en équivalent d'air, varie entre 2 et 45 cm avec la valeur la plus probable 28 ± 2 cm. Sa direction d'émission est de préférence perpendiculaire à celle des deux fragments lourds. Les masses M_3 semblent former un spectre avec un maximum de probabilité vers la masse très légère $M_3 = 5$; cependant, en tenant compte des erreurs expérimentales, tous les cas (sauf le cas $M_3 = 32$) sont compatibles avec une valeur unique de la masse comprise entre 4 et 7. L'énergie cinétique de tripartition 154 ± 10 MeV, légèrement supérieure à celle de la bipartition, est qualitativement en accord avec la prévision théorique. La fréquence du phénomène par rapport à celle de la bipartition est $0{,}003 \pm 0{,}001$.

Un groupe de particules de faible énergie ($E < 3$ MeV) semble être émis au moment de la fission. S'il entre dans la catégorie des phénomènes de tripartition, sa fréquence serait environ 1 pour 100 de celle de la bipartition.

Deux cas de quadripartition ont été observés : l'un correspond à quatre fragments lourds ($M > 20$), l'autre correspond à trois fragments lourds et un léger. L'énergie cinétique moyenne est environ 100 MeV, en bon accord avec la prévision théorique. La fréquence de la quadripartition par rapport à celle de la bipartition est $0{,}0002 \pm 0{,}00015$.

Dans le cas de la fission du noyau composé $^{239}_{92}U$, ni tripartition avec troisième fragment de long parcours, ni quadripartition n'ont été observés. Seule l'émission de la particule légère de parcours court a été enregistrée. Son énergie, sa fréquence et l'aspect du phénomène sont tout à fait semblables à ce qui a été observé avec le noyau composé ^{236}U.

Une partie de ces résultats est confirmée par d'autres auteurs.

La discussion de la plupart des résultats concorde d'une façon satisfaisante avec le mécanisme de la tripartition déduit du modèle de la goutte liquide du noyau. Dans le langage courant, les trois fragments se sont séparés simultanément. L'émission du troisième fragment de long parcours pourrait être liée avec les niveaux moins élevés du noyau composé.

I. — HISTORIQUE ET INTRODUCTION.

Après la découverte en 1939 de la fission des noyaux lourds par la capture d'un neutron [1, 2], de nombreux travaux effectués dans différents pays ont conduit aux résultats suivants [3] :

1° Le noyau de $^{235}_{92}U$ capturant un neutron peut se scinder en deux noyaux plus légers dont les masses varient autour des valeurs les plus probables suivantes [4] (*fig.* 1) :

$$M_1 = 138, \qquad M_2 = 96.$$

D'après la connaissance de l'énergie de liaison des noyaux, une telle cassure libère une grande quantité d'énergie E_f d'environ 180 à 190 MeV. Cette énergie se manifeste en majeure partie sous forme d'énergie cinétique des deux fragments projetés dans des directions opposées. Le rapport des énergies cinétiques initiales des deux fragments est inverse de celui de leurs masses

$$\frac{E_1}{E_2} = \frac{M_1 V_1^2}{M_2 V_2^2} = \frac{M_2}{M_1}.$$

Les expériences comportant la mesure de l'ionisation des fragments individuels ont permis d'obtenir la distribution statistique de leurs énergies cinétiques qui se groupent en effet en deux courbes de répartition dont les énergies les plus probables sont d'environ 60 MeV et 90 MeV. La valeur moyenne de l'énergie cinétique totale est [5]

$$(E_{\text{cin}})_{^{236}_{92}\text{U}} = 150 \pm 10 \text{ MeV}.$$

Le reste de l'énergie $\Delta E = E_f - E_{\text{cin}}$, soit environ 30 MeV, est partagé entre l'énergie d'excitation interne des fragments et l'énergie emportée par les neutrons émis lors de la fission et dont le nombre moyen est compris entre **2** et **3** [6].

* Membre d'outre-mer de l'Académie Nationale de Peiping, Chine.

Ces deux fragments chargés possédant une grande énergie peuvent traverser une certaine épaisseur de matière comme les particules α et les protons [7].

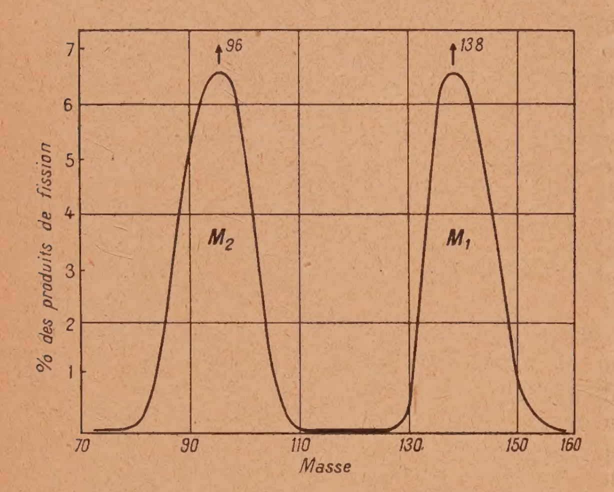


Fig. 1. — Pourcentage des produits de fission du noyau composé $^{236}_{92}U$ en fonction de leur masse.

Différentes méthodes ont permis d'obtenir les parcours de ces fragments de fission : ils varient autour des deux valeurs suivantes [8] :

$R_1 = 1,9$ cm d'air pour le fragment lourd M_1,
$R_2 = 2,5$ » » léger M_2.

En se basant sur la théorie du passage des atomes chargés à travers la matière, Bohr [8, 9] a pu construire à l'aide des données expérimentales les courbes de vitesse des fragments en fonction du parcours ($V — R$) qui ont été très utiles pour nos travaux.

3° Les noyaux $^{238}_{92}U$ et $^{232}_{90}$Th ne donnent le phénomène de fission que par capture d'un neutron rapide. Les valeurs des masses et des énergies cinétiques des fragments sont connues avec moins de précision que pour ^{235}U :

$(E_{cin})_{^{239}_{92}U} \sim 160$ MeV [10, 11],
$(E_{cin})_{^{233}_{90}Th} \sim 140$ » [11, 12].

L'ensemble de ces faits principaux est relatif à la *bipartition* des noyaux d'U et de Th en deux fragments chargés, dont le nom a été donné par F. Joliot en 1939 lors de ses travaux originaux sur la preuve physique de ce phénomène [2].

Du point de vue énergétique, Bohr et Wheeler [13] ont estimé que l'énergie totale libérée dans une bipartition symétrique ($M_1 = M_2$) serait environ 200 MeV, soit 10 à 20 MeV de plus qu'avec les masses inégales $M_1 = 138$, $M_2 = 96$. Une fission en trois fragments chargés de même masse donnerait une énergie d'environ 210 à 220 MeV, légèrement supérieure à celle de la bipartition symétrique. Par contre une fission en quatre fragments de même masse donnerait une énergie inférieure (150 MeV).

En se basant sur le modèle de la goutte liquide, Present [14] avait montré qu'une fission en trois fragments est dynamiquement possible et il était souhaitable que cette vue théorique soit confrontée avec l'expérience.

A la conférence de physique de Cambridge qui a eu lieu en juillet 1946, Livesey et Green ont projeté une photo sur laquelle une bipartition de l'uranium était accompagnée d'une longue trajectoire, semblable à celle d'une particule α. aucune explication du phénomène n'a été donnée par les auteurs. L'un de nous (T. S. T.) a pensé qu'il était possible que cet aspect soit dû à une fission en trois fragments chargés. Des expériences ont été faites aussitôt et les résultats ont été positifs.

Nos deux premières publications (1946) apportaient la preuve expérimentale des phénomènes de tripartition et de quadripartition [15, 16]. En 1946, Demers [17] et en 1947 Livesey et Green [18]; Farwell, Segrè et Wiegand [19] ont indépendamment publié leurs résultats expérimentaux sur l'émission d'une particule légère accompagnant la fission de l'uranium.

Dans l'exposé suivant, nous allons d'abord décrire les méthodes expérimentales que nous avons employées, puis les résultats auxquels nous sommes parvenus, ensuite nous confronterons les résultats des différents auteurs. Enfin, nous donnerons quelques considérations théoriques sur ces nouveaux phénomènes.

II. — PROCÉDÉS EXPÉRIMENTAUX.

Après la préparation des plaques photographiques spécialement riches en argent par Ilford Ltd sous la direction du Dr Powell de l'Université de Bristol, les recherches de physique nucléaire ont été beaucoup facilitées.

Ces plaques [20], dans des conditions de développement normal donnent pour les rayons α des trajectoires individuelles presque continues tandis que celles des protons ont des grains légèrement séparés. L'homogénéité de ces plaques est telle que la fluctuation de parcours des rayons α naturels monocinétiques est seulement trois fois plus grande que celle qu'on observe par les méthodes de la chambre de Wilson ou de l'amplificateur proportionnel : leur pouvoir séparateur est environ 3 mm équivalent d'air (760 mm et 15° C) [21].

Afin d'utiliser ces plaques pour enregistrer les trajectoires des fragments de fission, nous avons opéré comme suit :

Une plaque « Ilford nuclear research » de type C_2 et d'une épaisseur d'émulsion de 40 μ est trempée pendant 5 mn dans une solution de nitrate d'urane $(UO^2)(NO^3)^2.6H^2O$, lavée ensuite légèrement, puis immergée pendant 3 mn dans de l'alcool éthylique, le séchage est terminé dans un courant d'air. Ainsi imprégnée de sel d'uranium, elle est enveloppée dans du papier noir puis transportée près du cyclotron où elle est soumise à l'action des neutrons lents. Le cyclotron du Collège de France fournissant les neutrons par la réaction D-Be, la plaque était placée dans un bloc de paraffine ralentisseur de 5 cm d'épaisseur, lui-même protégé par un écran de plomb de 5 cm d'épaisseur destiné à absorber la plus grande partie des rayons γ produits dans la cible du cyclotron.

Après 10 mn d'irradiation, la plaque était immédiatement développée dans un bain dilué de révélateur Ilford ID 19 :

Métol	4 g
Sulfite de Na (crist.)	300
Hydroquinone	16
Carbonate de Na (crist.)	200
Bromure de K	10
Eau	Q. S. pour 2 l de solution

(*Révélateur Ilford* ID 19.)

La dilution du révélateur et le temps de développement *dépendent de la concentration du sel d'uranium et du phénomène qu'on cherche.* Nous nous proposions d'avoir des trajectoires de fragments de fission bien développées dans toute l'épaisseur de l'émulsion photographique, sans être trop gênés par les trajectoires des protons projetés par les neutrons; nous avons donc utilisé comme révélateur

1 partie (ID 19) + 19 parties d'eau

et nous avons développé pendant 40 mn à la température d'environ 18° C.

Dans ces conditions, vu l'effet de désensibilisation provoqué par la présence du sel d'urane [22], les fragments de fission étaient bien visibles dans toute l'épaisseur de la couche sensible et apparaissaient comme des lignes noires, épaisses presque continues, les rayons α dus à la désintégration radioactive naturelle de l'uranium, moins nombreux, apparaissaient comme des lignes fines pointillées. Les protons de recul étaient presque invisibles et donnaient non des trajectoires mais un fond de grains isolés.

En irradiant avec des neutrons rapides, ce procédé simple de développement ne nous a pas donné de résultats satisfaisants, les protons de recul étant trop nombreux. Les trajectoires de fission étaient noyées dans une grande quantité de grains isolés formant un enchevêtrement dense. En essayant de diminuer ce fond par la diminution de la concentration du révélateur ou la diminution de la durée de développement, les trajectoires de fission, elles-mêmes, n'étaient plus très bien développées et par conséquent leur longueur n'était plus très bien définie.

Après plusieurs essais, le sel d'uranium semblant manifester deux effets de désensibilisation : *a.* effet physique se manifestant au moment de la formation de l'image latente; *b.* effet chimique se manifestant au moment du développement, nous avons opéré de la façon suivante : une plaque, imprégnée d'abord dans une solution très concentrée (plus de 20 pour 100) de sel d'urane, était exposée comme précédemment mais aux neutrons rapides et pendant un temps assez court. La grande concentration d'urane désensibilise d'une façon appréciable pour la formation des images latentes dues aux protons de recul mais elle ne gêne pas beaucoup la formation des images latentes dues aux fragments de fission, beaucoup plus ionisants. Aussitôt après l'irradiation et avant le développement, nous avons lavé la plaque pendant 1 h dans l'eau courante pour faire sortir presque tout le sel d'urane inclus, puis nous l'avons immergée quelques minutes dans une solution diluée de nitrate d'urane afin d'avoir la même concentration en surface et en profondeur. Faute de faire le premier lavage, l'effet de désensibilisation chimique au développement dû au sel d'urane est tel que la plaque n'est développée qu'en surface, le révélateur ayant enlevé le sel en surface mais non en profondeur.

Dans ces conditions, malgré la grande quantité de protons de recul produits dans la gélatine, la plaque se prête assez bien à l'étude des phénomènes liés à la fission provoquée par des neutrons rapides,

Ces plaques développées convenablement, fixées. séchées, sont observées au microscope à immersion de fort grossissement (grandissement linéaire = 1000 environ). La correction à apporter sur les mesures verticales et qui est due au départ du bromure d'argent provoquant un affaissement de la gélatine sera étudiée dans l'Appendice n° **1**.

III. — RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX OBTENUS AVEC LES NEUTRONS LENTS.

A. **Trajectoires des fragments de bipartition.** — La plupart des trajectoires observées (uranium + neutrons lents) sont rectilignes, les deux fragments de fission étant projetés dans des directions opposées, *il est impossible de préciser sur la trace observée le point où la fission a eu lieu* [15, 25].

La densité des grains dans la trajectoires diminue vers la fin. Les caractéristiques sont les mêmes

que celles des trajectoires de fission déjà observées à la chambre Wilson [8]. Souvent vers la fin de la trajectoire $\left(\text{environ } \frac{1}{4} \text{ de la longueur de trajectoire d'un fragment de fission}\right)$, il y a une courbure due aux petits chocs nucléaires successifs et une fois sur 10 environ, on observe des fourches dues aux chocs nucléaires : projection d'un atome présent dans la plaque (*U*, Ag, Br, O, N, C, ...) par un des fragments de fission.

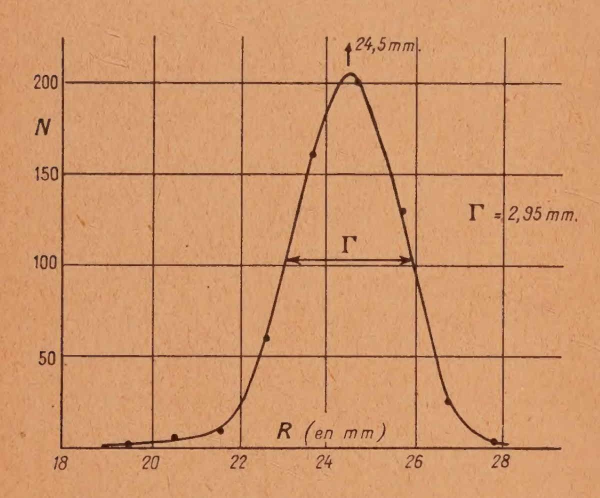


Fig. 2. — Distribution statistique des parcours des traces de bipartition de $^{236}_{92}U$ dans l'émulsion photographique.
Correction : l'unité de longueur est le micron et non le mm.

La figure 2 représente la statistique des longueurs des traces se trouvant dans un plan peu incliné sur l'horizontale (chacune d'elles correspond à deux fragments de fission associés). La courbe de répartition diffère peu d'une courbe de Gauss, le parcours le plus probable est 24,5 μ et la largeur de la courbe est 2,95 μ. En utilisant la valeur 4,4 cm d'équivalent d'air pour la somme moyenne des parcours de deux fragments de fission associés, mesurée à la chambre Wilson par Bøggild, Brostrøm et Lauritsen [8], nous obtenons l'équivalence suivante pour les fragments de fission :

1 μ d'émulsion = 0,18 cm d'équivalent d'air [25].

Nous savons que l'énergie cinétique totale de deux fragments de bipartition se distribue statistiquement autour de la valeur 150 MeV, la largeur de la courbe obtenue dépendant des conditions expérimentales. D'après les meilleurs résultats, obtenus par Flammersfeld, Jensen et Gentner, [5] cette largeur est 23 MeV.

La fluctuation des parcours de fission observée est donc due à deux causes : *a*. fluctuation de l'énergie cinétique de fission; *b*. fluctuation de parcours pour une même énergie. En admettant 23 MeV comme limite supérieure de la largeur due à la fluctuation de l'énergie, ce qui correspond à une largeur de la courbe statistique des parcours de 1,7 μ, nous déduisons la limite inférieure de la largeur de parcours pour une même énergie initiale soit

$$\Gamma = \sqrt{(2{,}95)^2 - (1{,}7)^2} = 2{,}4\ \mu.$$

La limite inférieure de la largeur relative est donc la suivante

$$\frac{\Gamma}{R} = \frac{2{,}4}{24{,}5} = 10 \text{ pour } 100.$$

Dans un travail précédent [21], nous avions déterminé la largeur relative pour les rayons α monocinétiques dans le même genre de plaques : avec des rayons α de parcours équivalent à environ 3 cm d'air la largeur relative était environ 10 pour 100. La comparaison de ces deux résultats montre que la valeur obtenue avec les trajectoires de fission est raisonnable et que les conditions de développement sont convenables; l'insuffisance de développement se traduirait par une diminution irrégulière du parcours et par conséquent, par une augmentation de la largeur relative.

B. **La fission en trois fragments chargés (tripartition).** — Certaines traces présentent l'aspect de trois lignes de grains d'argent issues d'un même point (planche, *fig.* A, B, C, D). Souvent une des trois lignes est plus longue et plus fine, ce qui indique que la masse du fragment correspondant est beaucoup plus légère que celle des deux fragments lourds ayant donné naissance aux deux autres branches. Cependant un jugement basé sur l'ionisation du fragment léger mesurée par la densité de grains révélés par unité de longueur ne permet pas de déterminer la masse de façon précise : selon le cas, des masses comprises entre 2 et 12 sont compatibles avec les apparences observées.

Des analyses précises, portant sur la conservation de l'impulsion (*voir* appendice n° 2) montrent qu'il est impossible d'interpréter tous ces cas comme la projection par un fragment de bipartition d'un élément contenu dans l'émulsion (U, Ag, Br, O, N, C, H).

Les calculs portant sur les cas observés nous ont amenés à supposer qu'il s'agit d'**un nouveau mode de fission de l'uranium**, c'est-à-dire la **fission en trois fragments chargés (tripartition)**, les intervalles séparant l'émission de ces trois fragments n'étant pas décelables et étant comparables à la vie moyenne du noyau composé. Autrement dit, dans le langage courant, les trois fragments sont **émis simultanément** [15, 29].

a. **Calcul d'un cas de tripartition.** — Prenons un exemple pour montrer comment nous pouvons déduire les masses et les énergies des fragments d'une tripartition à partir des longueurs des traces et de leurs angles (*fig.* 3).

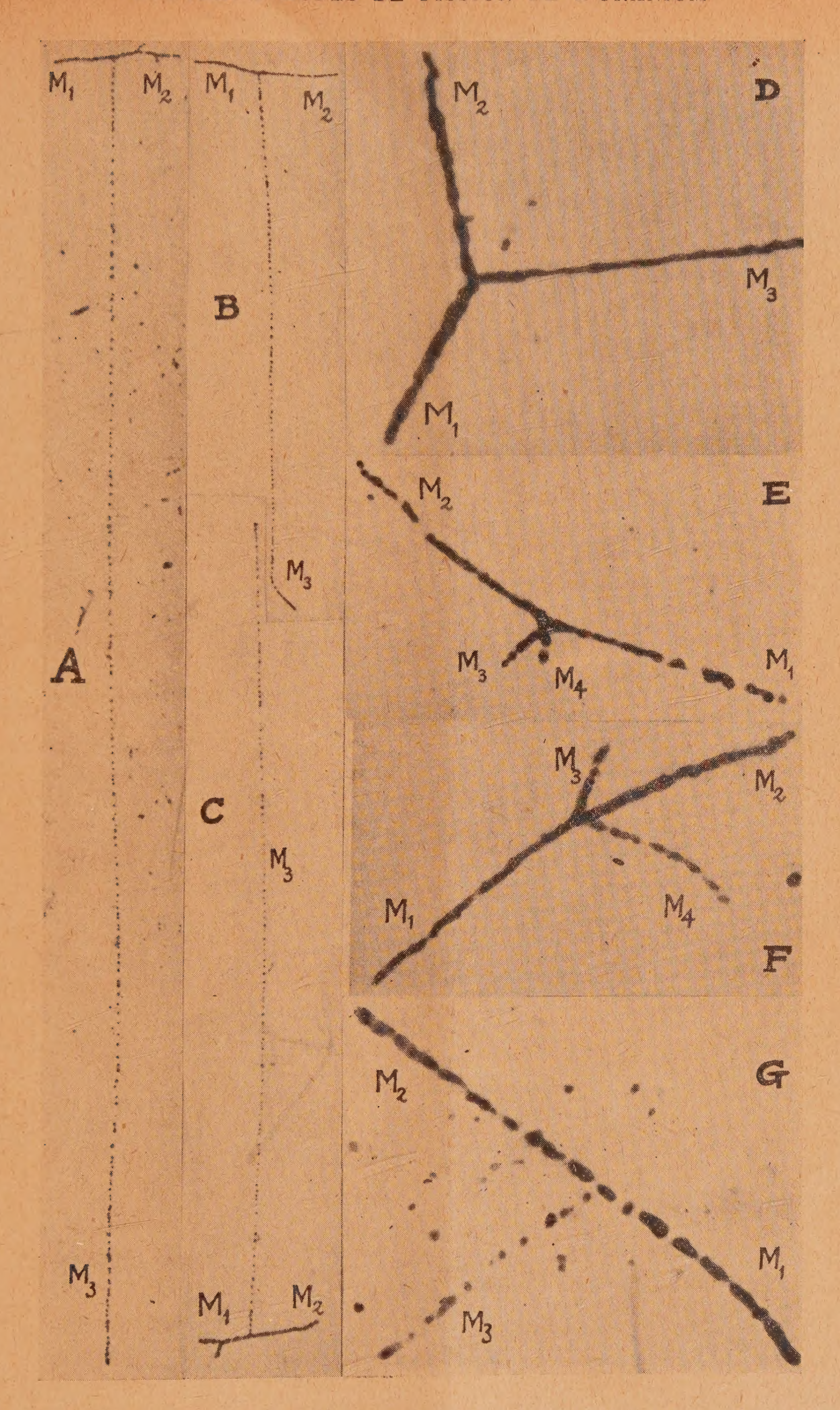


Fig. A, B, C. — Tripartitions du noyau composé ${}^{236}_{92}U$ avec l'émission d'un troisième fragment léger de long parcours R_3 (à peu près à la même échelle). — A : $R_3 = 44$ cm équivalent d'air 760 mm-15° C (le plus long qu'on a observé); B : $R_3 = 17$ cm équivalent d'air 760 mm-15° C (un des moins longs); C : $R_3 = 25$ cm équivalent d'air 760 mm-15° C (parcours voisin du parcours le plus probable). On voit la différence de l'angle entre M_1 et M_2 dans les cas B et C. Cette différence de l'angle se traduit par la différence de masses calculées pour M_3 : $M_3 = 9 \pm 2$ (cas B) et $M_3 = 5 \pm 1$ (cas C).

Fig. D. — Tripartition du noyau composé ${}^{236}_{92}U$ en trois fragments lourds : $M_1 = 127 \pm 13$, $M_2 = 77 \pm 8$, $M_3 = 32 \pm 5$.

Fig. E et F. — Quadripartitions du noyau composé ${}^{236}_{92}U$.

Fig. G. — Une particule légère liée à la partie centrale et rectiligne d'une trace de fission représentant une paire de fragments lourds M_1 et M_2 (obtenu avec l'uranium irradié aux neutrons rapides).

Les figures D, E, F et G sont à peu près à la même échelle.

Nous utilisons d'abord les courbes $V - R$ de Bohr [8, 9], qui donnent la vitesse en fonction du

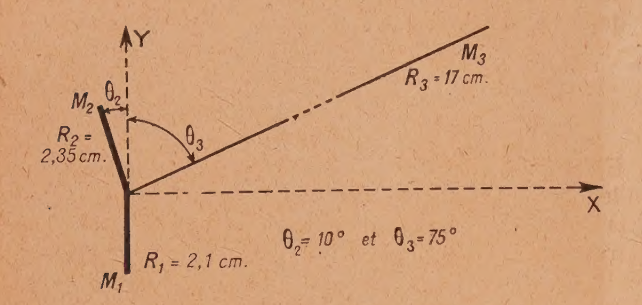


Fig. 3. — M_1 et M_2 : fragments lourds. M_3 : fragment léger.

parcours pour les deux groupes des fragments de fission (*fig.* 4 *a*). Pour un parcours donné $R = 2,1$ cm nous relevons sur ces courbes deux points P et Q dont les ordonnées sont les vitesses pour $M = 140$ et $M = 93$.

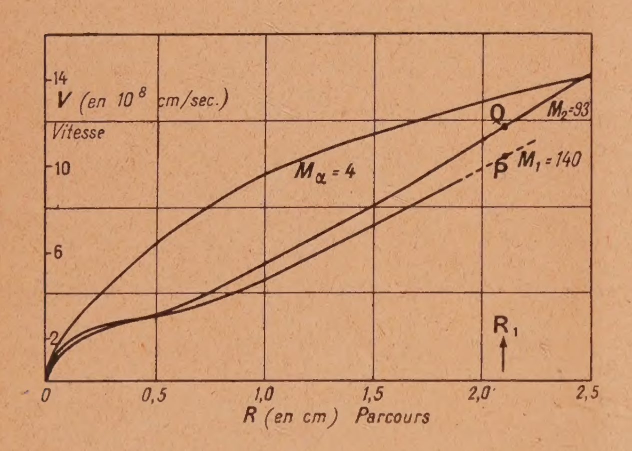


Fig. 4 *a*. — Vitesse en fonction du parcours (*V*—*R*) pour les fragments de fission et les particules α.

Nous reportons ces points sur la figure 4 *b* et construisons la courbe $V - M$ relative au parcours 2,1 cm en extrapolant linéairement entre P et Q, ce qui paraît justifié pour les masses voisines des masses indiquées, c'est-à-dire dans l'intervalle de masses $60 < M < 150$.

Nous opérons de même pour le parcours 2,35 cm de l'autre fragment lourd.

Pour le fragment léger (troisième fragment), *quand le parcours est inférieur à* 2 *ou* 3 cm *d'air*, nous utilisons la relation $V - R$ connue pour les rayons α et celles prévues théoriquement par Knipp et Teller [23] par un calcul basé sur les mesures expérimentales effectuées sur les atomes de recul C, N, O et F. *Quand le parcours est supérieur à* 10 cm, la relation $V - R$ des rayons α (24) est valable avec une bonne approximation pour toutes les masses comprises entre 2 et 12.

Le manque de renseignements expérimentaux dans la zone $20 < M < 60$ nous oblige, dans la construction des courbes $V - M$ à raccorder avec le minimum de courbure les points où $M > 60$ et ceux où $M < 20$. Cette imprécision introduit une erreur d'environ 15 pour 100 sur les masses calculées comprises entre 20 et 60 et d'environ 10 pour 100 seulement sur les masses comprises entre 60 et 150.

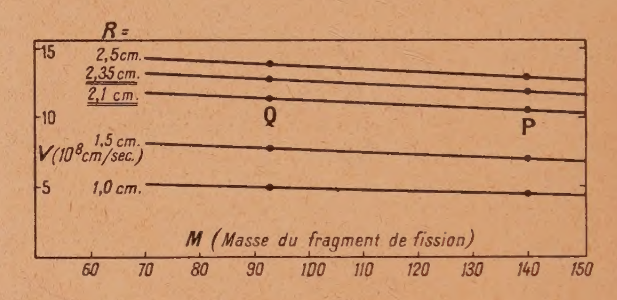


Fig. 4 *b*. — Vitesse en fonction de la masse (*V*—*M*) des ions lourds pour un parcours donné.

Dans une tripartition, il y a *conservation de la masse* et *conservation de l'impulsion*. Nous supposons que le noyau composé ${}^{236}_{92}U$ est responsable de la tripartition et qu'il n'y a pas de neutrons émis lors de la fission en trois fragments. On a donc

$$M_1 + M_2 + M_3 = 236,$$

$$M_1 \vec{V}_1 + M_2 \vec{V}_2 + M_3 \vec{V}_3 = 0.$$

Nous allons voir qu'on peut obtenir les masses par une suite de tâtonnements successifs :

α. Premier essai (*fig.* 3). — Nous choisissons arbitrairement les valeurs des masses (130, 100, 6). Nous lisons les vitesses correspondantes sur les courbes $V - M$ de la figure 4 *b*.

$R_1 =$ 2,1 cm	$M_1 = 130$	$V_1 = 10,8.10^8$ cm : s
$R_2 =$ 2,35	$M_2 = 100$	$V_2 = 12,8$
$R_3 = 17$	$M_3 = 6$	$V_3 = 25,3$

Prenant comme unité d'impulsion celle d'un proton de 10^8 cm : s, l'impulsion résultante suivant OY est

$$\begin{aligned} p_Y &= -M_1 V_1 + (M_2 V_2 \cos\theta_2 + M_3 V_3 \cos\theta_3) \\ &= -1404 + (1280 \times 0,985 + 152 \times 0,259) \\ &= -1404 + 1289 = -115. \end{aligned}$$

Écart relatif suivant OY

$$\frac{p_Y}{M_1 V_1} = \frac{-115}{1404} = -8 \text{ pour } 100.$$

L'impulsion résultante suivant OX est

$$p_x = -M_2V_2\sin\theta_2 + M_3V_3\sin\theta_3$$
$$= -1280 \times 0{,}174 + 152 \times 0{,}966$$
$$= -222 + 147 = -75.$$

Écart relatif suivant OX

$$\frac{p_x}{M_2V_2\sin\theta_2} = \frac{-75}{222} = -34 \text{ pour } 100.$$

β. Deuxième essai

$M_1 = 124$ $V_1 = 10{,}9.10^8$ cm : s
$M_2 = 103$ $V_2 = 12{,}8$
$M_3 = 9$ $V_3 = 25{,}3$

Impulsion résultante suivant OY

$$p_y = -M_1V_1 + (M_2V_2\cos\theta_2 + M_3V_3\cos\theta_3)$$
$$= -1352 + (1302 + 59)$$
$$= -1352 + 1361 = +9.$$

Écart relatif

$$\frac{p_y}{M_1V_1} = \frac{+9}{1352} \sim +1 \text{ pour } 100.$$

Impulsion résultante suivant OX

$$p_x = -M_2V_2\sin\theta_2 + M_3V_3\sin\theta_3$$
$$= -229 + 220 = -9.$$

Écart relatif

$$\frac{p_x}{M_2V_2\sin\theta_2} = \frac{-9}{229} = -4 \text{ pour } 100.$$

L'impulsion suivant OY est donc compensée à 1 pour 100 près, mais suivant OX la compensation n'est pas encore parfaite.

γ. Troisième essai.

$M_1 = 124$ $V_1 = 10{,}9.10^8$ cm : s
$M_2 = 102$ $V_2 = 12{,}8$
$M_3 = 10$ $V_3 = 25{,}3$

Impulsion résultante suivant OY

$$p_y = -M_1V_1 + (M_2V_2\cos\theta_2 + M_3V_3\cos\theta_3)$$
$$= -1352 + (1286 + 66)$$
$$= -1352 + 1352 = 0.$$

Écart relatif suivant OY ~ 0.
Impulsion résultante suivant OX

$$p_x = -M_2V_2\sin\theta_2 + M_3V_3\sin\theta_3$$
$$= -227 + 244 = +17.$$

Écart relatif suivant OX

$$\frac{p_x}{M_2V_2\sin\theta_2} = \frac{+17}{227} = +7 \text{ pour } 100.$$

Nous voyons qu'en passant du deuxième au troisième essai, l'écart relatif de l'impulsion suivant OX change de signe et augmente en valeur absolue, ce qui indique que *nous avons déjà dépassé le meilleur point de compensation de l'impulsion.* Comme nous ne pouvons pas prendre pour les masses des valeurs non entières, nous adoptons donc le résultat du deuxième essai comme solution

$M_1 = 124$ $V_1 = 10{,}9.10^8$ cm : s $E_1 = 76$ MeV
$M_2 = 103$ $V_2 = 12{,}8$ $E_2 = 88$
$M_3 = 9$ $V_3 = 25{,}3$ $E_3 = 30$

E_1, E_2, E_3 étant les énergies cinétiques de chacun des trois fragments calculées d'après la masse et la vitesse. L'énergie cinétique totale des trois fragments est

$$\Sigma E = 194 \text{ MeV}.$$

δ. Erreur sur la masse M_3. — Tandis que les erreurs sur M_1 et M_2 dépendent surtout de la fluctuation des parcours, l'erreur commise sur M_3 dépend essentiellement de la mesure des angles θ_2 et θ_3. Admettons que l'erreur sur la mesure expérimentale de ces angles soit $\Delta\theta = \pm 1°$, nous pouvons déterminer les valeurs limites de la masse M_3

1° Avec $\left\{\begin{array}{l}\theta_2 = 10° - 1° = 9° \\ \theta_3 = 75° + 1° = 76°\end{array}\right\}$ on trouve $M_3 = 8{,}3$.

2° Avec $\left\{\begin{array}{l}\theta_2 = 10° + 1° = 11° \\ \theta_3 = 75° - 1° = 74°\end{array}\right\}$ on trouve $M_3 = 10{,}3$.

En tenant compte qu'il existe d'autres erreurs inévitables et que les masses sont entières, nous concluons que la valeur de M_3 est

$$M_3 = 9 \pm 2.$$

Dans les Appendices nos **3** et **4**, nous exposerons *comment les tâtonnements conduisant à la solution peuvent être conduits d'une facon systématique.*

b. **Distribution du parcours des trois fragments.** — Sur plus de 10 000 trajectoires, nous avons observé plus de 30 cas de fission en trois fragments. Lorsque θ_2 est plus grand que 1°, nous avons pu déterminer la masse M_3 et éliminer le cas d'une collision d'un noyau par un des fragments lourds. Quand les trajectoires sont peu inclinées par rapport à l'horizontale (moins de 5°) et entièrement contenues dans l'émulsion, aucune difficulté ne se présente dans la détermination des masses et des énergies. Lorsqu'elles sont inclinées mais encore contenues toutes les trois entièrement dans l'émulsion, nous avons rétabli la figure dans son plan en faisant des mesures en profondeur au moyen de la vis micrométrique du mouvement vertical lent du microscope, soigneusement étalonnée préalablement en ses différents points. Il convient de remarquer que lors du développement, les grains de bromure d'argent sont dissous et l'on constate un aplatissement considérable de la gélatine qui a diminué de volume par suite du départ de ceux-ci. Cet effet se manifeste particulièrement dans les plaques utilisées en recherche nucléaire, car elles sont très riches en bromure d'argent : en gros, il faut multiplier les profondeurs

observées par 2 pour avoir les profondeurs vraies dans l'émulsion avant le développement (*voir* l'Appendice n° **1**).

Finalement, sur plus de 30 cas, 18 ont pu être calculés. De plus, dans deux autres cas où la trajectoire du fragment M_3 était entièrement contenue

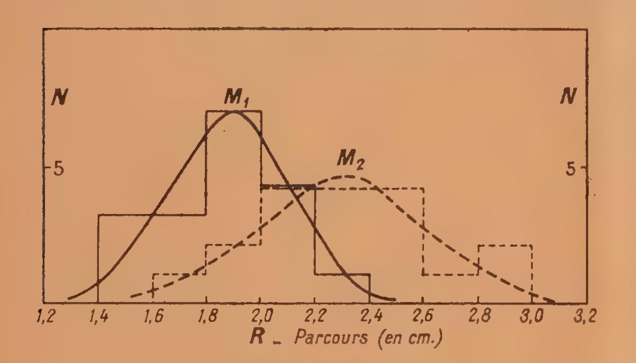


Fig. 5. — Distribution statistique des parcours de M_1 et M_2.

dans la couche sensible mais l'un des deux fragments lourds était sorti de l'émulsion, nous avons fait figurer la longueur de la trajectoire de M_3 dans la statistique des parcours du fragment léger. Une partie de ces résultats a déjà été publiée dans des publications antérieures [25, 26, 27].

La statistique d'ensemble des parcours en équivalent d'air des cas étudiés est schématisée par les figures 5 (fragments lourds M_1 et M_2) et 6 (fragment léger M_3).

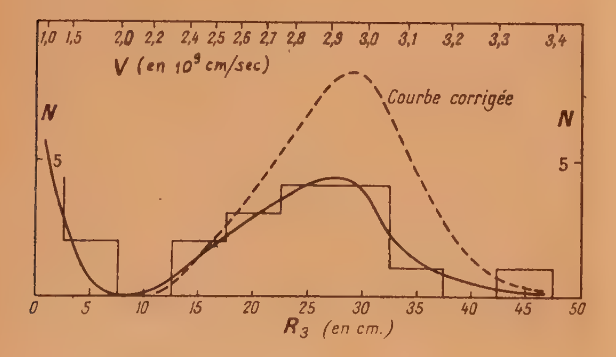


Fig. 6. — Distribution statistique du parcours (la courbe en trait plein représente les données expérimentales, la courbe en trait pointillé représente la distribution vraie).

On voit que pour les fragments lourds, les parcours moyens sont dans le cas de la tripartition

$$R_1 = 1{,}9 \text{ cm d'air}, \qquad R_2 = 2{,}3 \text{ cm d'air},$$

tandis que dans le cas de la bipartition, on a

$$R_1 = 1{,}9 \text{ cm d'air}, \qquad R_2 = 2{,}5 \text{ cm d'air}.$$

Il semble donc que la somme $R_1 + R_2$ dans le cas de la tripartition soit un peu plus petite en moyenne que dans le cas de la bipartition.

Pour le fragment léger, il y a un groupe court de parcours inférieur à 5 cm et un autre groupe dont le parcours varie entre 15 et 45 cm d'air avec un maximum situé vers 27 cm (*fig.* 6). Les vitesses correspondantes des particules varient entre 2,4 et $3{,}4 . 10^9$ cm : s. Ceci correspond aux cas que nous avons étudiés, mais si l'on note que le fragment léger a d'autant plus de chances de sortir de la gélatine que son parcours est plus long, il y a lieu pour obtenir la distribution statistique vraie du phénomène de corriger la courbe en traits pleins de la figure 6 en avantageant les parcours longs par rapport aux parcours courts, on obtient ainsi la courbe en traits pointillés de la figure 6; le *maximum d'intensité est un peu déplacé du coté des vitesses élevées et des grands parcours, il se situe vers* 29 cm *et correspond à une vitesse de* 2,9 *à* $3{,}0 \times 10^9$ cm : s.

c. **Direction d'émission du fragment léger M_3.** — Appelons α_1 (*fig.* 7 *a*) l'angle que fait la trajectoire



Fig. 7 *a*. — M_1 et M_2 : fragments lourds.
M_3 : fragment léger.

longue peu ionisante du fragment léger M_3 avec la trajectoire épaisse du fragment M_1 le plus lourd (trajectoire la plus courte). Appelons α_2 l'angle

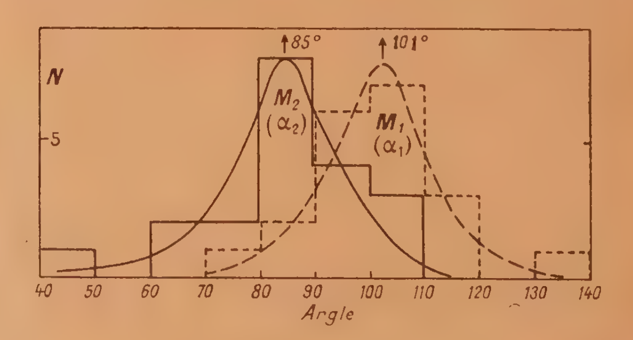


Fig. 7 *b*. — Distribution statistique
des angles α_1 et α_2 que font M_1 et M_2 avec M_3.

que fait la trajectoire de M_3 avec la trajectoire épaisse du fragment M_2 un peu moins lourd que M_1 (trajectoire un peu plus longue que celle de M_1).

La figure 7 *b* représente la distribution statistique

des angles α_1 et α_2. En général (17 cas sur 20),

$$\alpha_1 > \alpha_2,$$

ce qui indique que M_1 emporte plus d'impulsion que M_2.

La valeur moyenne de la différence des angles α_1 et α_2 est

$$\Delta\alpha = \alpha_1 - \alpha_2 = 16^{\circ}.$$

D'une façon générale, les deux fragments lourds sont émis dans des directions presque opposées, *le fragment léger est émis de préférence dans une direction perpendiculaire à celles-ci.*

d. **Distribution des masses des trois fragments.** — Ainsi que nous l'avons vu dans la section *a*, nous pouvons calculer les masses des trois fragments.

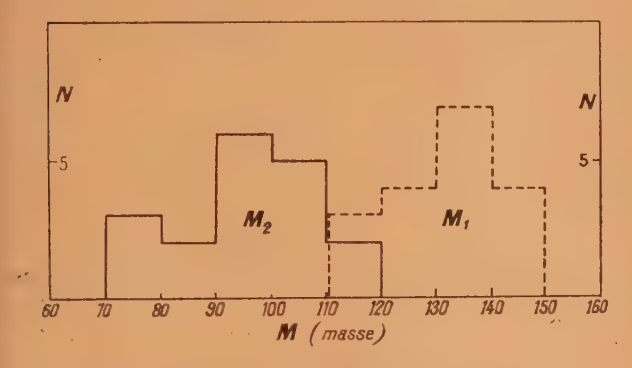


Fig. 8. — Distribution statistique des masses calculées des fragments lourds M_1 et M_2.

Les figures 8 et 9*a* représentent les statistiques des masses calculées pour les fragments lourds (M_1 et M_2) et le fragment léger M_3.

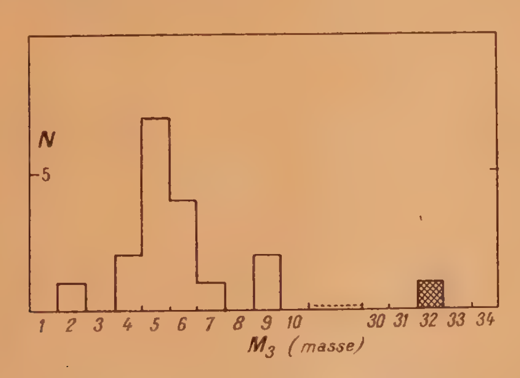


Fig. 9*a*. — Distribution statistique de la masse calculée du fragment léger M_3.

Pour les deux fragments lourds, les valeurs calculées les plus probables sont $M_1 = 132$ et $M_2 = 97$. Dans notre calcul nous avons utilisé les relations $V - R$ de Bohr [8, 9], celui-ci avait adopté 93 et 140 comme valeurs les plus probables des masses dans la bipartition. Etant donné qu'on a déterminé depuis [4] ces masses avec plus de précision ($M_1 = 138$, $M_2 = 96$), il en résulte que les valeurs corrigées les plus probables dans le cas de la tripartition sont

$$M_1 = 130, \qquad M_2 = 99.$$

Pour le troisième fragment, on voit que *la masse est presque toujours très légère* ($M_3 < 12$) *avec la valeur la plus probable vers* $M_3 = 5$, sauf un cas où $M_3 = 32$ (planche, *fig.* D).

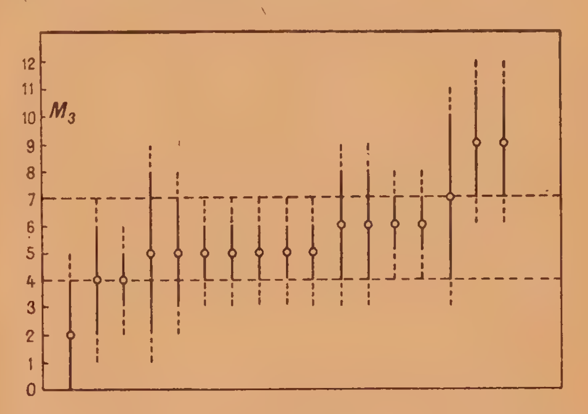


Fig. 9 *b*. — Masse de M_3 (sauf le cas $M_3 = 32$) avec les limites d'erreurs. Le trait plein représente les limites d'erreurs expérimentales, le trait pointillé représente celles dues à l'émission des neutrons lors de la tripartition (s'il y a lieu).

Dans ce cas particulier [27], le calcul donne

$$M_1 = 127, \qquad M_2 = 77, \qquad M_3 = 32$$

avec les erreurs possibles $\pm$ 10 pour 100 sur M_1 et M_2 et 15 pour 100 sur M_3. Si l'on observe les traces sous le microscope, on constate dans ce cas particulier que les trois branches ont des ionisations distinctes, toutes plus élevées que celle d'une particule α (une particule α laisse une file de grains distincts tandis qu'un fragment de fission laisse une grosse trace presque continue). La branche la plus épaisse correspond bien à la masse calculée la plus lourde ($M_1 = 127$) et la branche la moins épaisse à la masse calculée la moins lourde ($M_3 = 32$).

Si ce cas particulier appartenait à la même classe de phénomènes que les autres cas de tripartition, *il inciterait à penser que les fragments légers n'ont pas la même masse et qu'il y a un spectre de masses de ceux-ci.*

Examinons les erreurs qui peuvent s'introduire dans la détermination de la masse M_3 :

1° L'imprécision de la mesure des angles, surtout θ_2 (*fig.* 3) a une très grande importance pour M_3.

2° Les erreurs de la mesure des parcours ainsi que la fluctuation des parcours influencent très

peu M_3; 10 pour 100 d'erreur sur l'énergie d'un fragment introduirait au plus 5 pour 100 d'erreur sur la détermination de M_3.

3° Nos calculs ont été basés sur la relation $V - R$ de Bohr qui correspond à une énergie cinétique de bipartition de 162 MeV. L'emploi de la nouvelle valeur 150 MeV diminuerait M_3 d'environ 4 pour 100.

Les erreurs (2°) et (3°) sont faibles devant celle provenant de la cause (1°). Dans la section *a*, nous avons très largement apprécié celle-ci et l'on peut considérer que l'erreur indiquée couvre l'ensemble des trois causes ci-dessus.

Dans la figure 9 *b*, ces trois erreurs sont bloquées ensemble et la limite d'erreur correspondante est indiquée par un trait plein vertical.

4° Enfin nous ne savons pas si des neutrons pourraient être émis dans une tripartition comme c'est le cas dans la bipartition. S'ils sont émis, nous n'avons aucun moyen de connaître leur impulsion éventuelle ni sa direction : il a fallu en conséquence la négliger dans le calcul. En supposant qu'un neutron d'énergie supérieure à 10 MeV [28] soit émis dans la même direction que M_3 ou bien dans une direction opposée, ce qui constitue un cas des plus défavorables, notre calcul introduit sur M_3 une erreur de masse comprise entre 1 ou 2 unités de masse ($\Delta M_3 \sim 1,5$). En moyenne, nous avons admis un peu arbitrairement dans la figure 9 *b* une erreur de 1 unité de masse. Cette erreur est figurée indépendamment de celles signalées plus haut, par un trait vertical pointillé.

On voit (*fig.* 9 *b*) que la zone des masses comprises entre 4 et 7 est compatible avec tous les résultats expérimentaux : 15 cas sur 17 sont compatibles avec les masses 4, 5 ou 7, 16 cas sur 17 sont compatibles avec la masse 6. Comme des erreurs non envisagées ont pu avoir lieu dans un ou deux cas, on voit que :

Il n'est pas exclu que la masse M_3 (< 10) ait en réalité une seule valeur possible : tous les fragments légers seraient des particules identiques, la masse M_3 serait celle d'une particule bien définie.

S'il en était ainsi, il faudrait considérer que le cas particulier $M_3 = 32$ appartient à une autre classe de phénomènes que la plupart des tripartitions ($M_3 =$ const. < 10).

e. **Énergie cinétique des trois fragments.** — D'après le calcul, nous avons les masses et les vitesses des trois fragments et par suite leur énergie. On trouve que le fragment lourd M_1 a une énergie cinétique moyenne $E_1 = 62$ MeV et le fragment moins lourd M_2 une énergie cinétique moyenne de $E_2 = 82$ MeV.

Mais ce calcul est fondé sur la relation $V - R$ de Bohr, qui est basée sur l'ancienne énergie de bipartition (162 MeV); avec la nouvelle valeur (150 MeV) il y a lieu de faire une correction correspondante sur les valeurs des énergies cinétiques que nous avons calculées et de prendre les valeurs moyennes suivantes :

$E_1 = 58$ **MeV** (**fragment lourd** M_1),
$E_2 = 76$ (» M_2).

L'erreur commise sur l'énergie est de l'ordre de 10 pour 100.

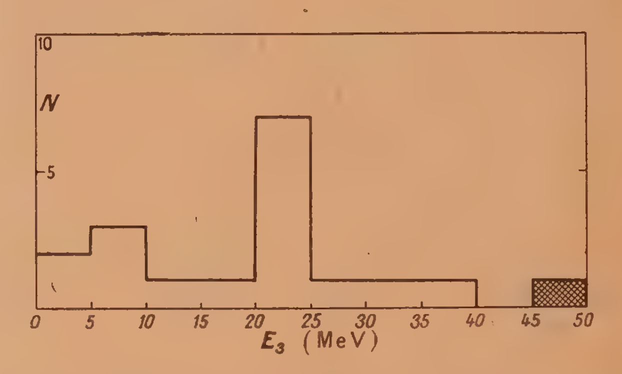


Fig. 10 *a*. — Répartition statistique de l'énergie du troisième fragment M_3. La case indiquée en traits quadrillés correspond au cas où $M_3 = 32$.

L'énergie cinétique du fragment léger M_3 varie de 2 MeV à 49 MeV suivant les parcours et les masses calculées des cas particuliers. La *figure* 10 *a* représente sa distribution statistique, *la valeur la plus fréquente est* 23 MeV (sous réserve déjà faite dans la section *b* que les parcours longs ayant plus de chances de sortir de la gélatine, ils sont un peu désavantagés dans la statistique et par suite aussi les grandes énergies).

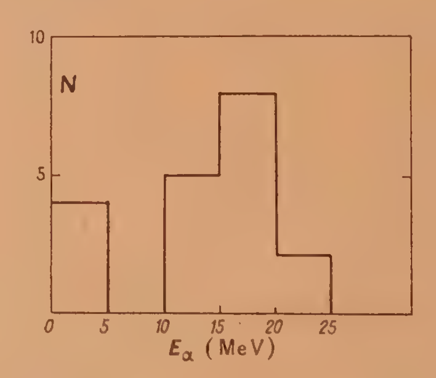


Fig. 10 *b*. — Répartition statistique de l'énergie de M_3 si l'on suppose que $M_3 = 4$ (sauf le cas où $M_3 = 32$).

Si nous supposons que toutes les particules légères (excepté le cas $M_3 = 32$) ont la même masse et que la répartition apparente en un spectre de masses est due aux imprécisions inévitables, la distribution de l'énergie sera différente. En prenant $M_3 = 4$

(particules α) on aurait la répartition d'énergie de la *figure* 10 *b*, le maximum d'énergie étant 23 MeV et l'*énergie la plus fréquente* 18 MeV. En prenant une autre valeur unique, par exemple $M_3 = 6$, on aurait une distribution qui ne différerait de celle de la *figure* 10 *b* que par l'échelle des énergies.

L'énergie cinétique totale des trois fragments (corrigée conformément à la valeur 150 MeV de l'énergie cinétique de bipartition) a la valeur moyenne suivante :

$$E_{\text{cin}}\,(\text{tripartition}) = 154 \pm 10\ \text{MeV}.$$

Elle paraît donc légèrement supérieure à celle de la bipartition (150 MeV).

D'après l'estimation de Bohr et Wheeler [13], une tripartition en trois particules de masses à peu près égales libérerait une énergie totale supérieure d'environ 10 à 20 MeV à celle qui est libérée lors d'une bipartition symétrique. Si l'on suppose que dans la tripartition, l'énergie cinétique emportée par les neutrons et l'énergie d'excitation des fragments est à peu près la même que dans le cas de la bipartition (*voir* historique et introduction), la valeur que nous obtenons est *qualitativement en accord avec les prévisions théoriques*.

f. **Fréquence de la tripartition.** — D'après nos observations, on peut conclure que :

$$\frac{\text{Nombre de tripartitions}}{\text{Nombre de bipartitions}} = 0{,}003 \pm 0{,}001.$$

La limite d'erreur que nous indiquons est supérieure à celle qui résulte de notre statistique par suite de la possibilité que des trajectoires intéressantes aient échappé à l'observation.

Pour la même raison, la valeur 0,003 est peut-être un peu sous-estimée.

g. **Recherche sur la nature du fragment léger de long parcours.** — Après les preuves expérimentales obtenues de l'existence de ce fragment, nous avons essayé de détecter s'il est radioactif.

Nous avons employé un dispositif analogue à celui qui a permis à F. Joliot de donner la preuve physique du phénomène de la fission [2] : un cylindre creux était recouvert d'une couche d'oxyde d'urane. Il était enveloppé dans des feuilles de cellophane et placé à l'intérieur d'un cylindre creux de plexiglass, matière qui s'active peu aux neutrons. Les feuilles de cellophane avaient une épaisseur équivalente à 6 cm d'air et absorbaient certainement les fragments lourds de la bipartition et de la tripartition, tandis que le fragment léger de long parcours pouvait les traverser et aller se fixer dans le plexiglass, où sa radioactivité éventuelle aurait pu être mise en évidence. L'enveloppement de cellophane était soigneusement étanche afin de ne pouvoir être contourné par les gaz radioactifs (Kr, Xe, ...), produits lors de la fission.

L'ensemble était exposé aux neutrons lents du cyclotron puis le manchon cylindrique de plexiglass était placé autour d'un compteur β de Geiger-Muller de paroi $\frac{1}{10}$ de millimètre d'aluminium.

Des expériences ont été faites pour des temps d'irradiation variables, la même expérience étant répétée avec urane et sans urane. Il n'a pas été observé de différence entre l'activité β du plexiglass en présence ou en l'absence d'urane.

Ceci montre que le troisième fragment léger de long parcours ne possède pas d'activité observable dans les conditions expérimentales utilisées. Mais nos expériences n'excluent pas *la possibilité d'avoir des périodes plus longues que* 1 *jour ou plus courtes que* 5 *s*.

Dans le domaine des masses comprises entre 2 et 12, en supposant que les fragments M_3 ne soient pas uniquement des particules α, on pourrait s'attendre à observer ${}^3_1H$ ($T = 31$ ans), ${}^6_4He$(T=0,8 s), ${}^8_3Li$ (T = 0,88 s), ${}^{10}_4Be$ ($T >$ 1000 ans), ${}^{12}_5B$(T=0,22 s), en raison de leur excès de neutrons. Ces périodes sont trop longues ou trop courtes pour que nous ayons eu l'espoir de les détecter dans les expériences simples que nous avons réalisées.

Il est souhaitable qu'une analyse des fragments de fission soit entreprise au spectrographe de masses dans la région des poids atomiques légers. En utilisant une source de neutrons intense, par exemple une pile à uranium, on pourrait ainsi obtenir davantage d'informations sur la masse du fragment léger émis lors de tripartitions.

h. **Trajectoires courtes liées aux traces de fission.** — Dans une plaque à l'uranium irradiée aux neutrons lents, on observe de temps en temps une trajectoire courte liée dans la partie centrale de la trace laissée par les fragments lourds de fission (*Planche*, *fig.* G). Généralement ces traces sont peu épaisses et paraissent dues à un ion de masse légère. Ici il n'y a aucun angle observable entre les deux parties de la trace épaisse; il est donc impossible de déterminer les masses en supposant que l'apparence observée est due à une tripartition et d'éliminer par le calcul la possibilité d'un choc nucléaire d'un fragment de fission au début de son parcours,, contre un noyau d'un des éléments présents dans la plaque.

Cependant une partie de ces trajectoires courtes est émise dans une direction à peu près perpendiculaire à celle des fragments lourds, ce qui indique que probablement certaines d'entre elles sont liées au phénomène de fission.

Green et Livesey [18] ont, les premiers, observé la présence de ces trajectoires courtes déjà décelées par la méthode des coïncidences dans un travail non publié de Cassels, Dainty, Feather et Green [18].

Nous avons compté toutes les trajectoires qui ont leur origine dans la partie centrale rectiligne

de la trace des deux fragments lourds de fission et obtenu les distributions suivantes du parcours et de l'angle d'émission (*fig.* 11 *a* et *b*). Si toutes

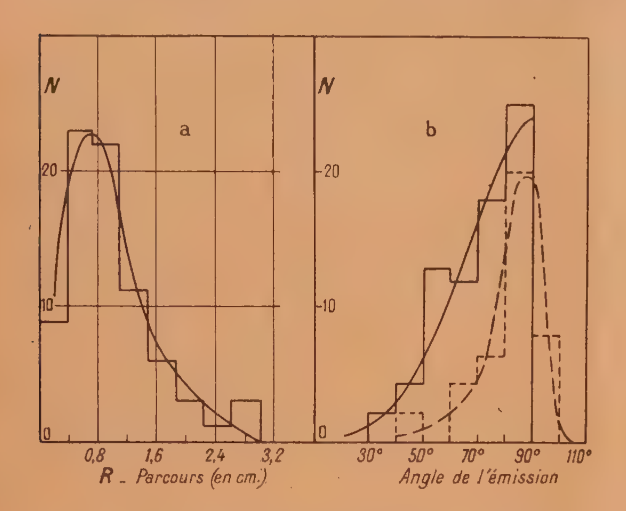


Fig. 11. — *a.* Distribution statistique du parcours des trajectoires courtes liées avec la fission.

b. Répartition statistique de l'angle d'émission des trajectoires courtes mesuré par rapport à un des fragments lourds : courbe en trait plein.

La courbe en trait pointillé représente la répartition de l'angle d'émission de M_3 de long parcours mesuré par rapport à un des fragments lourds, généralement M_2.

ces trajectoires étaient liées réellement au phénomène de fission, le parcours varierait entre 0 et 3 cm d'air équivalent avec un parcours le plus probable de $0{,}8 \pm 0{,}2$ cm. La distribution de l'angle d'émission serait, d'autre part, plus étalée que dans le cas des tripartitions avec émission d'un troisième fragment de long parcours. Ceci n'est pas en accord avec ce qu'ont trouvé Green et Livesey, d'après lesquels il n'y a pas de différence sensible dans la répartition de l'angle d'émission suivant que le troisième fragment est de long ou bien de court parcours.

La fréquence de ce genre de trajectoires est environ $0{,}011 \pm 0{,}001$ de celle de la fission ordinaire (bipartition).

C. **Quadripartition de l'uranium sous l'action des neutrons lents.** — Au cours de nos travaux relatifs à la tripartition de l'uranium sous l'action des neutrons lents, nous avons observé deux cas particuliers dans lesquels **quatre trajectoires partent d'un point commun.** L'analyse précise portant sur la conservation de l'impulsion montre qu'il est improbable qu'il s'agisse de deux collisions de noyaux par des fragments de fission au même point (défini à 0,2 μ près).

Ainsi nous avons été conduits à supposer qu'il s'agit d'un nouveau phénomène dans la fission de l'uranium, c'est-à-dire, **la fission en quatre fragments chargés (quadripartition).**

a. **Premier cas.** — Il a déjà été publié en détail dans une note précédente [16] (*Planche, fig. E*). Les quatre trajectoires sont presque horizontales et sensiblement coplanaires, ce qui supprime une des trois relations de quantité de mouvement.

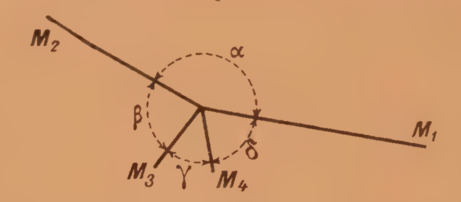


Fig. 12. — Schéma du premier cas de quadripartition. Parcours en équivalent d'air = *R*.

R_1 = 2,1 cm	α = 164°;
R_2 = 1,8 cm	β = 73°;
R_3 = 0,6 cm	γ = 47°;
R_4 = 0,4 cm	δ = 76°;

Il n'est donc pas possible de déterminer les masses et les énergies des fragments d'une façon unique à partir des mesures expérimentales (*fig.* 12). Pour une masse totale donnée, il y a une simple infinité de solutions dont voici quelques exemples :

N°	M_1.	M_2.	M_3.	M_4.	$M_3 + M_4$.
a........	81	99	20	36	56
b........	83	99	24	30	54
c........	84	99	26	27	53
d........	85	99	30	22	52
e........	86	99	31	20	51

N°	E_1.	E_2.	E_3.	E_4.	ΣE (MeV).
a........	58	47	5,5	3,1	114
b........	59	47	6,2	2,8	115
c........	60	47	6,5	2,6	116
d........	61	47	7,1	2,3	117
e........	61	47	7,1	2,1	117

Tous ces cas sont calculés en négligeant l'impulsion due aux neutrons qui pourraient être émis lors de la fission du noyau composé $^{236}_{92}U$.

Il se trouve dans ce cas particulier que, malgré l'infinité des solutions possibles, M_1 et M_2 varient peu et que $(M_3 + M_4)$ reste presque constant.

D'après l'observation au microscope, M_3 et M_4 donnent des ionisations comparables mais légèrement plus faibles que celles de M_1 et M_2. Malgré l'infinité des solutions pour les masses des quatre fragments, la géométrie de la figure et l'aspect de l'ionisation incident à penser que cette quadripartition est assez symétrique et qu'aucun fragment n'est très léger.

Bien qu'il y ait une infinité de solutions, l'énergie cinétique totale se trouve ici être peu sensible aux

différentes combinaisons de masses; elle est (sans correction) d'environ 115 MeV. Les erreurs sur les énergies et les masses M_1 et M_2 sont d'environ 10 pour 100 et celles sur M_3 et M_4 sont d'environ 15 pour 100.

b. **Deuxième cas.** — Le deuxième cas que nous avons observé, dans lequel trois des fragments sont lourds et un est léger, semble encore mieux justifier l'hypothèse de la quadripartition.

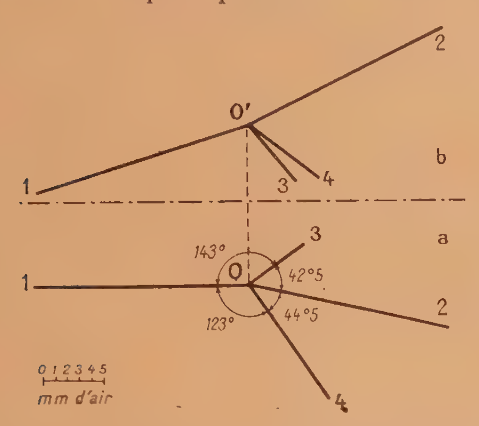


Fig. 13. — Schéma du deuxième cas de quadripartition. *a.* Projection horizontale. *b.* Projection verticale.

Toutes les trajectoires ne sont pas dans un plan (*Planche fig.* F, *fig.* 13 *a* et 13 *b*). M_4 a une ionisation semblable à celle d'une particule α et par suite il ne semble pas possible de la considérer comme un noyau projeté (H, C, N ou O). Son parcours est faible, son impulsion est donc très faible devant celle des autres particules.

Une analyse détaillée exclut le cas où les branches 1, 2 et 3 seraient dues à la projection d'un noyau lourd (Br, Ag, U) de l'émulsion par un des deux fragments d'une bipartition.

Pour toutes ces raisons, nous ne voyons pas comment l'apparence observée serait compatible avec une hypothèse autre que la quadripartition.

Les quatre trajectoires ne sont pas coplanaires, mais la branche **2** est à peu près dans le plan des branches **1** et **3**. Vu l'aspect de son ionisation, nous avons posé $M_4 = 4$ (le fait de prendre une valeur faible autre que 4 mais inférieure à 10 changerait très peu le résultat). Alors le calcul peut être conduit sans difficulté, il aboutit à la solution suivante :

Fragment.	R (cm d'air).	M.	V (10⁸ cm : s).	E_{cin} (MeV).
1......	1,95	84	10,8	51
2......	1,85	76	10,3	42
3......	0,77	72	4,2	7
4......	1,25	4	10,6	2
				$\Sigma E_{cin} = 102$

L'énergie cinétique totale indiquée ci-dessus n'a pas subi la correction.

On peut considérer que le calcul donne les masses et les énergies cinétiques avec une précision d'environ 10 pour 100.

c. **Énergie cinétique moyenne de la quadripartition.** — L'énergie cinétique totale moyenne des deux cas ci-dessus est : $\frac{115+102}{2} = 109$ MeV. Il y a lieu de tenir compte du fait que les courbes $V - R$ utilisées ont été établies en supposant une énergie de bipartition un peu trop élevée. On obtient donc pour l'énergie cinétique de la quadripartition de l'uranium provoquée par les neutrons lents :

$$E_{cin}\,(\text{quadripartition}) \sim 100\ \text{MeV}.$$

Dans leur article sur le mécanisme de fission nucléaire; Bohr et Wheeler [13], ont indiqué que si la fission de l'uranium se faisait par division en quatre fragments égaux, l'énergie libérée E_f serait inférieure d'environ 50 MeV à l'énergie E_f correspondant à la bipartition symétrique (*voir* historique et introduction). On aurait donc théoriquement :

$$E_f\,(\text{bipartition}) - E_f\,(\text{quadripartition}) \sim 50\ \text{MeV}.$$

D'après nos résultats expérimentaux

$$E_{cin}\,(\text{bipartition}) - E_{cin}\,(\text{quadripartition}) \sim 50\ \text{MeV}.$$

En supposant que $\Delta E = E_f - E_{cin}$ soit à peu près le même pour la bipartition et la quadripartition, *l'énergie cinétique observée de la quadripartition est en bon accord avec celle prévue par la théorie.*

d. **Fréquence de la quadripartition.** — D'après nos observation, le rapport

$$\frac{\textbf{Nombre de quadripartitions}}{\textbf{Nombre de bipartitions}} = 0{,}0002 \pm 0{,}00015.$$

IV. — RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX OBTENUS AVEC LES NEUTRONS RAPIDES.

Nous avons entrepris des expériences pour étudier la fission de l'uranium provoquée par les neutrons rapides et rechercher les phénomènes correspondant à de nouveaux modes de fission.

Sur plus de 10 000 trajectoires de fission observées, nous *n'avons pas trouvé un cas sûr de tripartition avec troisième fragment de long parcours* ($R > 5$ cm) *ni aucune quadripartition.* Par contre, nous avons enregistré des cas où une trajectoire courte est liée à la partie centrale et rectiligne d'une trace représentant une paire de fragments de fission (*Planche, fig.* G). Les courbes des figures 14 *a* et *b*

montrent la distribution du parcours et de l'angle d'émission de ces trajectoires courtes; elles sont très semblables aux figures 11 *a* et *b* relatives aux neutrons lents. Le parcours le plus probable est environ 0,6 ± 0,2 cm (équivalent d'air), ce qui est en bon accord, dans la limite des erreurs expérimentales avec celui qu'on a obtenu dans le cas des neutrons lents.

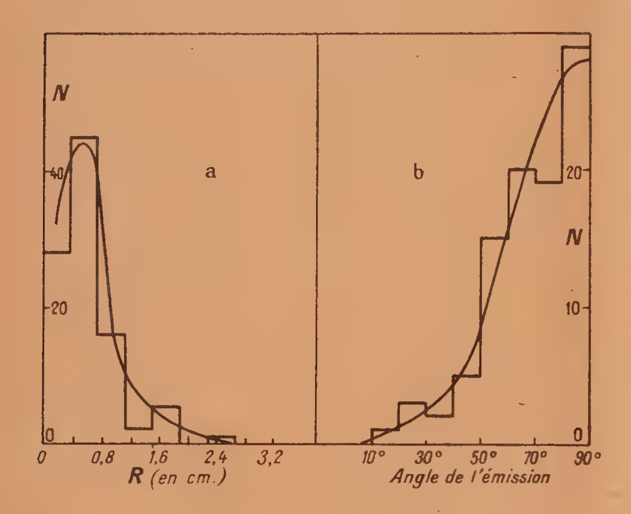


Fig. 14. — *a*. Distribution statistique des parcours des trajectoires courtes liées avec la fission de l'uranium provoquée par un neutron rapide.

b. Répartition de l'angle d'émission des trajectoires courtes liées avec la fission mesuré par rapport à un des fragments lourds.

Si toutes ces trajectoires sont réellement liées aux phénomènes de fission, la fréquence de ce phénomène, par rapport à la bipartition ordinaire serait 0,012 ± 0,001, elle serait du même ordre que celle qu'on a observée avec les neutrons lents.

Il résulte de ces observations que la tripartition (cas où le troisième fragment a un parcours long et où des angles observables entre les trois fragments permettent de calculer les masses et les énergies) est un phénomène lié très probablement à la fission du noyau composé $^{236}_{92}$U *tandis que l'émission probable de particules légères de très petite énergie est un phénomène commun à la fission des noyaux composés* $^{236}_{92}$U *et* $^{239}_{92}$U. Ces conclusions justifient l'emploi de la masse 236 dans les calculs que nous avons effectués sur les tripartitions avec le troisième fragment long.

Dans le cas de la fission de l'uranium provoquée par les neutrons rapides $^{235}_{92}$U et $^{238}_{92}$U interviennent tous les deux. La concentration de l'isotope $^{235}_{92}$U dans l'uranium naturel étant seulement environ $\frac{1}{140}$ de celle de $^{238}_{92}$U, si l'on suppose que les sections efficaces de bipartition par les neutrons rapides sont à peu près les mêmes pour les deux isotopes, que seul ^{235}U est responsable pour la tripartition et que pour ^{235}U le rapport $\frac{\text{Nombre de tripartitions}}{\text{Nombre de bipartitions}}$ est le même pour les neutrons rapides et les neutrons lents, nous pouvons nous attendre, dans le cas de l'uranium naturel soumis aux neutrons rapides, à observer une tripartition pour

$$140 \times \frac{1}{0{,}003} = 40\,000 \text{ bipartitions.}$$

D'autre part, l'emploi de ^{235}U pur, au lieu de l'uranium naturel, dans la réaction en chaîne actionnée par les neutrons rapides permet de penser que la section efficace de ^{235}U est supérieure à celle de ^{238}U. Admettons que le rapport des sections efficaces est de l'ordre de 10, le nombre de bipartition correspondant à une tripartition serait réduit à 4000. Expérimentalement nous n'avons observé aucune tripartition pour plus de 10 000. Dans les limites des fluctuations statistiques, nos observations s'accordent avec ces évaluations.

Dans l'ensemble, nos observations sont aussi compatibles avec l'hypothèse générale et simple que le rapport $\left(\frac{\text{Nombre de tripartitions}}{\text{Nombre de bipartitions}}\right)$ diminue avec l'excitation des niveaux au-dessus du seuil de fission. Nous reviendrons sur ces discussions dans le chapitre suivant.

(*A suivre.*)

« POUVOIR ÉMANATEUR » DE COMPOSÉS DE LANTHANE ACTINIFÈRE

Par Marguerite PEREY.
Institut du Radium. Paris.

Sommaire. — L'étude du « Pouvoir émanateur » de différents composés de lanthane actinifère a été faite au moyen d'un nouveau dispositif de mesure, en fonction de la température, de la nature des sels de lanthane, de la surface et de la concentration en actinium.

Introduction. — De nombreuses études ont été faites concernant le « Pouvoir émanateur » de substances contenant des produits radioactifs. Hahn [1] a exposé les méthodes utilisées concernant la mesure du Pouvoir émanateur de différentes substances contenant du thorium et du radium, et les conditions du dégagement de thoron et radon en fonction de la nature du composé considéré — sel minéral ou organique —, des conditions de précipitation, de séchage, etc.

Hahn arrive à la conclusion que le Pouvoir émanateur est essentiellement fonction de la surface externe du précipité servant de support au corps radioactif considéré.

Il nous a semblé utile d'étudier le Pouvoir émanateur de différents sels de lanthane actinifère en fonction de la nature de ces sels, des conditions de précipitation, de dessiccation, de la masse de matière et de la concentration en actinium. Cette étude a nécessité la construction d'une chambre d'ionisation d'un nouveau type, afin d'augmenter la précision des mesures.

Définition du « Pouvoir émanateur » : P. E. — Le P. E. d'une substance donnée est défini par le rapport entre la quantité d'émanation dégagée spontanément d'une substance à une température donnée, et la quantité totale d'émanation formée.

Le rayonnement β ou γ, par l'intermédiaire duquel on mesure les produits actinifères, est dû aux corps du dépôt actif

$$\mathrm{Ac}\ (22\ \mathrm{a}) \begin{cases} \xrightarrow{\alpha} \mathrm{Ac}\,K \xrightarrow[\beta]{21\ \mathrm{m}} \\ \xrightarrow{\beta} \mathrm{R\,Ac} \xrightarrow[\alpha]{18{,}9\ \mathrm{j}} \end{cases} \mathrm{Ac}\,X \xrightarrow[\alpha]{11{,}2\ \mathrm{j}} \mathrm{An} \xrightarrow[\alpha]{3{,}9\ \mathrm{s}} \mathrm{Ac}\,A \xrightarrow[\alpha]{2.10^{-3}\ \mathrm{s}}$$

$$\mathrm{Ac}\,B \xrightarrow[\beta]{36\ \mathrm{m}} \mathrm{Ac}\,C\ (2{,}16\ \mathrm{m}) \begin{cases} \xrightarrow{\beta} \mathrm{Ac}\,C' \xrightarrow[\alpha]{10^{-3}\ \mathrm{s}} \\ \xrightarrow{\alpha} \mathrm{Ac}\,C'' \xrightarrow[\beta]{4{,}7\ \mathrm{m}} \end{cases} \mathrm{Ac}\,D \quad \text{stable}$$

Le produit d'actinium [1] est mesuré lorsque le dépôt actif est en équilibre radioactif, pour cela il faut attendre 4 h après scellement du produit afin que l'émanation ne puisse s'échapper.

Si donc un produit actinifère, laissé à l'air libre, est placé dans une cuvette, puis est recouvert d'une lamelle de verre et immédiatement mesuré, on a une certaine activité A due au dépôt actif correspondant à l'actinon occlus dans la matière. Si, d'autre part, le même produit scellé est mesuré 4 h après, l'activité est B.

La différence d'activité $B - A$ correspond à l'actinon qui peut sortir librement du produit dans les conditions expérimentales.

$$\text{P. E.} = \frac{B - A}{B}.$$

Quel que soit le dégagement, B sera constant pour une quantité d'actinium donnée. Il faut trouver les conditions pour que A soit aussi petit que possible afin que le P. E. tende vers un maximum, c'est-à-dire que l'actinon puisse s'échapper du produit.

Dans la majeure partie des cas, la différence entre B et A est faible pour les produits actinifères, ce qui peut s'expliquer par la courte période de l'actinon $T_{\mathrm{An}} = 3{,}9$ s.

Nouvel appareil de mesure. — Afin d'augmenter la précision de la mesure de l'activité due au dégagement d'actinon, j'ai construit et étalonné une chambre d'ionisation d'un nouveau type (*fig.* 1).

Le produit à mesurer, étalé sur une coupelle de laiton de 3,5 cm de diamètre intérieur, est placé dans un tube cylindrique en verre, muni d'un rodage permettant la mise en place du produit.

Un courant d'air comprimé, dont le débit de 150 l/h

(1) Toutes les opérations chimiques ont été faites trois mois avant les mesures afin d'avoir R Ac et Ac X en équilibre radioactif avec Ac.

est indiqué par un manomètre étalonné au moyen d'un compteur à gaz, passe sur le produit actinifère, traverse une grille fine munie de coton de verre afin d'arrêter toute poussière radioactive et pénètre ensuite dans une chambre d'ionisation en verre, composée de deux plateaux de laiton de 30 mm de diamètre et distants de 10 mm. L'un des plateaux est porté à une tension de 700 V environ, l'autre est relié à l'électromètre. La chambre est maintenue au sol par une cage en toile métallique entourant la chambre d'ionisation. Des bouchons d'ambre isolent les plateaux de la chambre.

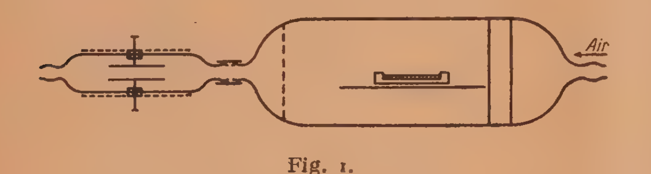


Fig. 1.

Le courant d'ionisation mesuré à l'électromètre est dû à l'actinon et au dépôt actif déposé sur les plateaux. L'équilibre est atteint après 3 h de débit gazeux. A titre d'exemple, voici les résultats d'une série de mesures :

Mise en place.	
10h15	6,6 g/s
11 15	15,8 »
12 15	17,3 »
14 15	17,3 »
18 15	17,3 »

Le même produit a été mesuré à plusieurs reprises afin de s'assurer de la fidélité de l'appareil. L'erreur maxima est ± 2 pour 100.

Afin de connaître la relation entre les valeurs obtenues par cette méthode et celles obtenues en mesurant à 5 cm de la chambre d'ionisation à rayonnement β, type P, on opère de la façon suivante :

Un produit initial de 0,200 g La_2O_3 est mesuré immédiatement après fermeture, à la chambre P : (constante du quartz K = 7,138)

$$\text{activité } A = 13{,}9 \text{ g/s},$$

après 4 h à l'équilibre

$$\text{activité } B = 14{,}7 \text{ g/s},$$

soit : $B - A = 0{,}8$ g/s l'activité due au dépôt actif correspondant à l'actinon accumulé.

$$\text{Le P. E.} = \frac{0{,}8 \times 100}{14{,}7} = 5{,}4 \text{ pour } 100.$$

Opérant sur le même produit placé dans la chambre d'ionisation du nouveau type, on a une activité mesurée de 17,2 g/s au lieu de 0,8 g/s. Le courant mesuré est donc 21,5 fois plus fort.

Le rapport a été également obtenu avec des fluorures dont le pouvoir émanateur était beaucoup plus grand.

Produit mesuré dès fermeture...	8,15 g/s
» après 3 h...	13,15 »

soit 5 g/s correspondant au dépôt actif de An accumulé

$$\text{et le P. E.} = \frac{5 \times 100}{13{,}15} = 37{,}5 \text{ pour } 100,$$

avec la nouvelle chambre, l'activité = 109 g/s; le courant mesuré est donc 21,8 fois plus fort qu'avec l'ancien dispositif.

Cette méthode permet d'augmenter considérablement la précision des mesures et évite le scellement du produit et les mesures rapides après ce scellement.

TABLEAU I.

Influence de la température sur le P. E. de différents sels de lanthane actinifère.

	Activité nouvelle chambre.	P. E. (pour 100).
I. *Hydroxydes de lanthane actinifère.*		
A. Précipitation à froid :		
Séchage air libre......	86	30
» étuve 80°.....	55	19
Calcination ~ 700°.....	37	14
» ~ 800°.....	19	6,5
» ~ 900°.....	12	4,1
(En laissant ce dernier oxyde à l'air libre $a = 22$.)		
B. Précipitation à chaud :		
Séchage air libre......	95	34
» étuve 80°.....	56	19
II. *Oxalates de lanthane actinifère.*		
A. Précipitation à froid :		
Séchage air libre......	1,9	0,6
» étuve 80°.....	3,3	1,1
Calcination ~ 700°.....	6	2,05
» ~ 800°.....	12	4,1
» ~ 900°.....	12	–
B. Précipitation à chaud :		
Séchage air libre......	8,3	2,8
» étuve 80°.....	7,7	2,6
III. *Carbonates de lanthane actinifère.*		
Précipitation à froid :		
Séchage air libre......	5,5	1,9
» étuve 80°.....	6,3	2,2
Calcination ~ 900°.....	10	3,4

	Activité nouvelle chambre.	P. E. (pour 100).
IV. *Fluorures de lanthane actinifère.*		
Précipitation à froid :		
Séchage air libre	109	37,5
» étuve 80°	92	31,5

Influence de la température sur le dégagement. — D'après le Tableau I, on voit que l'activité correspondant au dégagement de l'actinon varie, en fonction de la température, entre de grandes limites et dans des sens inverses, suivant la nature du composé considéré. Ainsi, pour l'hydroxyde de lanthane, l'activité passe de 86 lors du séchage à l'air libre à 12 pour une calcination prolongée à haute température. Dans le cas des oxalates, le dégagement très faible après séchage à l'air libre : 1,9, croît progressivement suivant la température de chauffage pour atteindre 12 lors de la calcination totale. Les carbonates dégagent également plus après chauffage et tendent vers une activité de 12.

Dans ces trois cas il y a transformation des hydroxydes, oxalates, carbonates, en oxydes. Lors d'une calcination prolongée au chalumeau, on observe que, quelle que soit l'origine de cet oxyde, on obtient un corps qui a le même P. E. devant correspondre à un état défini.

Ces oxydes laissés ensuite à l'air libre ont leur P. E. qui double rapidement.

Influence de la nature des sels de lanthane actinifère. — Dans les cas que nous venons d'étudier, on voit que pour des conditions de précipitation et de séchage semblables, on a

	Activité.	P. E. (pour 100).
Oxalates	1,9	0,65
Carbonates	5,5	1,9
Hydroxydes ...	86	30
Fluorures	109	37,5

Le P. E. varie donc dans de grandes limites pour différents composés.

Influence de la surface sur le P. E. — Dans tous ces essais, on opère sur des produits semblables, c'est-à-dire avec un produit d'origine correspondant à 0,200 g La_2O_3 et d'activité constante.

Sur des produits semblables mis en solution nitrique, on ajoute des quantités de nitrates correspondant à

0,100 g La_2O_3	0,100 g Fe_2O_3
0,200 »	0,200 »

Ces produits sont tous précipités dans les mêmes conditions par l'ammoniaque à froid, séchés à l'air libre et placés dans des cuvettes de laiton de 9,5 cm² de surface.

Hydroxyde de lanthane initial correspondant à :

	Activité.	P. E. (pour 100).
0,200 g La_2O_3	86	30
+ 0,100 »	100	34
+ 0,200 »	86	30
+ 0,100 Fe_2O_3	100	34
+ 0,200 »	86	30

Si l'on double le prélèvement de matière active en conservant la même surface, l'activité est 175 P. E. = 30 pour 100; l'activité a donc doublé comme la masse de substance active. Si, d'autre part, avec le même produit initial, on opère sur une surface moitié moindre, on a la même activité.

On peut conclure que dans les limites étudiées, limites assez étroites, le dégagement est proportionnel à la quantité de matière active.

Influence du milieu. — Avec ce dispositif expérimental, on ne peut modifier le milieu : atmosphère contenant des quantités différentes de vapeur d'eau, d'éther, alcool, chloroforme, acétone, etc., ces substances attaquant les isolants de la chambre d'ionisation.

Influence de la concentration en actinium. — Tous les essais précédents ont été faits sur des produits de lanthane actinifère de même concentration : chaque portion correspondait à 0,02 millicurie d'actinium.

D'après les valeurs données, on voit que les hydroxydes et les fluorures de lanthane ont un bon P. E., mais qu'en séchant ou en calcinant les hydroxydes, le P. E. décroît considérablement.

A maintes reprises, travaillant sur des produits actinifères concentrés, de l'ordre de 100 millicuries, c'est-à-dire 5000 fois plus forts que ceux étudiés précédemment, j'ai observé les faits suivants :

1° Le P. E. des fluorures, hydroxydes, oxydes, décroît dans le temps, il est régénéré par une nouvelle précipitation. Dans le cas des fluorures, les opérations sont dangereuses en raison des difficultés de transformation des fluorures et de la grande activité du produit.

2° Dans le cas des hydroxydes de lanthane contenant peu d'actinium, le précipité est très facilement pulvérisable, tandis que pour les produits concentrés en actinium, l'hydroxyde, en séchant, donne des petits blocs extrêmement durs et difficiles à pulvériser.

3° Si avec les produits faibles en Ac, le P. E. des hydroxydes décroît avec le chauffage, pour les produits concentrés en Ac, les meilleurs déga-

gements sont obtenus en calcinant les hydrates à haute température, puis en laissant l'oxyde quelques heures dans une atmosphère humide.

Le P. E. diminue au cours du temps, mais est régénéré par recalcination et contact avec une atmosphère humide.

4° Avec les produits concentrés, les meilleurs dégagements obtenus sont de l'ordre de 10 pour 100.

Comme on le voit, le problème du dégagement de l'actinon est, comme pour les autres émanations, extrêmement complexe, et les résultats obtenus avec les produits faibles ne sont pas applicables aux produits forts. Il est vraisemblable de penser qu'une modification de structure s'opère sous l'influence du rayonnement.

[1] Otto Hahn, *Applied Radiochemistry*, 1936.

Manuscrit reçu le 9 juillet 1947.

LA NOTION QUANTIQUE DE MÉLANGE ET SES APPLICATIONS

Par Jacques YVON.
Faculté des Sciences de Strasbourg.

Sommaire. — La notion de mélange, introduite par von Neumann en Mécanique quantique pour développer la théorie des mesures, fournit la méthode systématique d'étude des systèmes complexes.

La notion de mélange a été introduite en Mécanique quantique par von Neumann [1], en vue de développer la théorie des mesures. Mais cette notion a un domaine d'application qui déborde largement son objet primitif.

Considérons, en effet, un système mécanique complexe constitué de deux parties A et B, l'ensemble $A + B$ étant isolé. Soit

$$\Psi(x, y, t), \tag{1}$$

la fonction d'onde qui représente la situation physique du système à chaque instant. Ici x et y représentent respectivement une configuration quelconque de A et une configuration quelconque de B. Soit maintenant G l'opérateur d'une certaine grandeur physique du système A. Sa valeur moyenne est

$$\overline{G} = \iint \Psi^\star G \Psi \, dx \, dy.$$

Il est commode d'introduire comme intermédiaire de calcul l'expression

$$\mathcal{N}(x, \hat{x}, t) = \int \Psi^\star(\hat{x}, y, t) \Psi(x, y, t) \, dy,$$

où $\hat{x}$ représente une nouvelle configuration quelconque du système A. La quantité $\mathcal{N}$, que j'appellerai le noyau statistique de A, définit entièrement la situation physique du système A à l'instant t. Lorsque le système B, quoique présent, ne nous intéresse pas d'une manière précise, nous ne déterminerons la fonction d'onde (1) que si nous ne pouvons faire autrement alors qu'il nous sera indispensable de connaître $\mathcal{N}$ aussi exactement que possible. Suivant la terminologie relative aux noyaux des équations intégrales, le noyau $\mathcal{N}$ est hermitique.

Le noyau statistique étant connu, la moyenne de toute grandeur G qui concerne le système A seul se calcule suivant la formule

$$\overline{G} = \int \left\{ \lim_{\hat{x} \to x} G \mathcal{N}(x, \hat{x}) \right\} dx. \tag{2}$$

Selon von Neumann, on dit que le système A est dans un cas pur lorsque la fonction d'onde du système $A + B$ est le produit d'une fonction de x par une fonction de y. Alors le noyau statistique est simplement le produit de la même fonction de x par la fonction complexe conjuguée de $\hat{x}$. Lorsqu'il n'en est pas ainsi, on dit que le système est à l'état de mélange.

Lorsque les deux systèmes A et B n'exercent l'un sur l'autre aucune force et lorsque la situation physique initiale correspond à un cas pur, ce caractère se conserve indéfiniment. Mais, même en l'absence d'interaction, le cas pur est quelque chose d'exceptionnel : deux systèmes énergétiquement

indépendants ne sont pas statistiquement indépendants. Il en résulte qu'en général les propriétés d'un système même énergétiquement isolé ne sont pas représentés par une fonction d'onde, mais par un noyau statistique.

Au noyau statistique, notion quantique, correspond en Mécanique classique la densité de probabilité, qui, elle, est une fonction de la configuration et de l'ensemble des quantités de mouvement, en un mot, suivant la terminologie de Gibbs, de la phase. Donc, d'une part, la description quantique fait appel à deux configurations, d'autre part la description classique est mixte, combinant espace ordinaire et espace conjugué. Wigner [2] a montré que, moyennant une transformation de Fourier portant sur la configuration $(\hat{x}-x)$ $\Big[$cependant que la configuration $\frac{1}{2}(x+\hat{x})$ reste indemne$\Big]$, on peut substituer au noyau de probabilité une densité de probabilité réelle fonction de la phase. Toutefois, cette densité de probabilité ne mérite qu'à moitié son nom, car elle n'est pas nécessairement positive.

J'ai ajouté [3] au résultat de Wigner que toute moyenne quantique calculée à l'aide de l'opérateur G suivant le formalisme (2) peut s'évaluer également à l'aide de la densité de probabilité équivalente suivant une formule d'allure classique :

$$\overline{G} = \iint \gamma(x, p)\, D(x, p)\, \mathrm{d}x\, \mathrm{d}p,$$

γ étant une fonction définie d'une manière unique par l'opérateur G.

Lorsque le système A est isolé, le noyau statistique $\mathcal{N}$ évolue en fonction du temps suivant l'équation

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \mathcal{N} = \mathcal{H}\mathcal{N} - \hat{\mathcal{H}}^{\star}\mathcal{N}. \tag{3}$$

Wigner a formé l'équation équivalente pour la densité en phase. C'est évidemment la généralisation quantique de l'équation de Liouville. On comprend alors que la théorie des mélanges joue dans la Mécanique quantique le rôle de la Mécanique statistique ordinaire en Mécanique classique. Mais, en Mécanique quantique, aucune hypothèse particulière n'est indispensable pour introduire la notion de mélange, alors que, dans la Mécanique classique, Gibbs a dû faire appel à l'idée des grands ensembles pour justifier les considérations statistiques. Les difficultés afférentes à cette idée sont éliminées par la Mécanique quantique.

De l'équation de Liouville classique on déduit [4] les équations générales de la Mécanique des fluides. Soit, pour un fluide pur, l'équation de conservation, ce qui est banal, les équations du mouvement et l'équation de transfert de l'énergie. Cette déduction montre, en particulier, comment le tenseur des pressions cinétiques et intermoléculaires apparaît dans les équations du mouvement. Dresden [5], appliquant la même technique à l'équation de Wigner, trouve que les équations générales de la Mécanique des fluides sont les mêmes en Mécanique quantique qu'en Mécanique classique, la constante de Planck disparaissant du résultat. Toutefois, en se limitant pour abréger aux équations du mouvement, il faut noter que le tenseur des pressions, exprimé en fonction des paramètres macroscopiques locaux et de leurs gradients, peut être profondément différent du tenseur classique, ce qui est important pour la théorie de l'hélium II.

Ces jours-ci, Born et Green [6] publient des conclusions analogues en partant, non pas de l'équation de Wigner, mais d'une équation voisine de (3), ce qui, d'ailleurs, revient au même. Leur communication, qui n'est encore qu'un résumé, indique qu'ils ont éclairci divers points du problème de l'hélium. Ils pensent que leurs conceptions doivent se substituer à celles de Landau [7], car, si celui-ci a prévu la propagation de deux sortes de sons dans l'hélium II, il a présenté une argumentation qui n'est pas absolument claire.

La notion de mélange a été envisagée à propos des particules à spin par F. Bloch, Hansen et Packard [8] dans leur Mémoire sur les phénomènes d'induction nucléaire qu'ils ont mis en évidence avec les protons de l'eau. Il ne me paraît pas douteux que la même notion, jointe à la technique qui permet de passer des équations genre Liouville aux équations genre hydrodynamique (ici exactement électrodynamique) sera fort utile dans la théorie des métaux, notamment à propos de la supraconductibilité. Dans les problèmes qui concernent, soit dit pour fixer les idées, les électrons, la situation physique est représentée par un spineur qui comporte un certain nombre n de composantes. Dans la théorie des mélanges, la situation sera représentée par n^2 noyaux dont l'ensemble forme une matrice qui est hermitique au sens de la théorie des équations intégrales multiples.

Envisager des problèmes relatifs à des particules pourvues de spin conduit à se préoccuper du point de vue relativiste. Ce point de vue conduit à une généralisation intéressante, parce qu'elle est, à certains égards, une simplification : au lieu de décrire la situation physique avec des noyaux fonctions d'un seul temps et de deux configurations, on la décrira avec des noyaux fonctions de deux configurations d'espace-temps, x et t, $\hat{x}$ et $\hat{t}$ respectivement. Lorsque le sujet, par exemple, ne comporte que l'utilisation d'un seul noyau :

$$\mathcal{N}(x, t, \hat{x}, \hat{t}),$$

celui-ci satisfait à la condition d'hermiticité dans l'espace-temps :

$$\mathcal{N}^{\star}(x, t, \hat{x}, \hat{t}) = \mathcal{N}(\hat{x}, \hat{t}, x, t),$$

et vérifie, si le système est isolé, les deux équations

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \mathfrak{N} = \mathcal{H}\mathfrak{N}, \tag{3}$$

$$-i\hbar \frac{\partial}{\partial \hat{t}} \mathfrak{N} = \hat{\mathcal{H}}^{\star} \mathfrak{N}. \tag{4}$$

Cette dernière équation est d'ailleurs une conséquence de la précédente et de la condition d'hermiticité, si bien que les équations d'évolution (3) et (4) se ramènent à l'équation (3) qui est l'équation de Schrödinger elle-même. Ces idées peuvent être utilisées sans que le problème soit par ailleurs relativiste, sans que l'opérateur $\mathcal{H}$ soit conforme au principe de relativité restreinte. La simplification obtenue ainsi est d'atténuer encore la différence qui existe entre cas pur et mélange.

Appliquons les notions précédentes à un système ne contenant qu'un électron relativiste. Les quatre composantes du spineur de Dirac donnent naissance à 16 noyaux, fonctions chacun de deux configurations d'espace-temps. Moyennant des combinaisons linéaires appropriées, on les ramène aisément à 16 quantités qui sont individuellement des noyaux d'Hermite et qui constituent, dans l'espace-temps,

un vecteur	U_i;
»	S_i,
un bivecteur	M_{ij},
deux scalaires	Ω_1 et Ω_2.

Multipliées respectivement par $c\varepsilon$, $\frac{\hbar}{2}$, $\frac{\varepsilon\hbar}{2mc}$, les trois premières de ces quantités sont associées au courant, au spin et au moment électrique et magnétique.

Ce tableau rappelle évidemment le tableau des grandeurs de même nom, développé par L. de Broglie [9] à propos du cas pur, mais, ici, ces grandeurs ne sont liées par aucune relation algébrique. Elles vérifient seulement le système d'équations suivant :

$$P^i U_i + mc\Omega_1 = 0,$$
$$P^i S_i - imc\Omega_2 = 0,$$
$$mc U_i = P_i\Omega_1 - i P^j M_{ij},$$
$$mc S_i = -iP_i\Omega_2 + \frac{1}{2}\alpha_{ijkl}P^j M^{kl},$$
$$mc M_{ij} = i(P_i U_j - P_j U_i) - \alpha_{ijkl}P^k S^l,$$

où P^i est l'opérateur $-i\hbar\frac{\partial}{\partial x_i} - \frac{\varepsilon}{c}A^i$ et α_{ijkl} un nombre égal à + ou — 1 suivant que la permutation des indices i, j, k, l est paire ou impaire. Naturellement, à ces équations on peut joindre celles qui résultent de l'hermiticité. Ces formules peuvent constituer une introduction à l'application de la notion de mélange dans les problèmes à électrons tournants.

En conclusion, dans l'étude des systèmes complexes, la notion de mélange associée avec la méthode régressive qui permet de diminuer le nombre des paramètres pris en considération, soit par une voie rigoureuse, soit au prix d'approximations convenables, fournit la méthode systématique d'étude. Naturellement, bien des Mémoires qui ne font pas allusion explicitement à cette technique l'utilisent implicitement; c'est le cas de la théorie quantique de la lumière qui manipule un système à une infinité de degrés de liberté, mais dont les processus importants en concernent rarement plus de deux ou trois.

Manuscrit reçu le 20 juin 1947.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] VON NEUMANN, *Les fondements mathématiques de la Mécanique quantique*, traduction française par A. Proca, Paris, 1946.
[2] WIGNER, *Phys. Rev.*, 1932, **40**, p. 749.
[3] *C. R. Acad. Sc.*, séance du 1er juillet 1946.
[4] *Actualités scientifiques et industrielles*, n° **203**, Paris, 1935.
[5] DRESDEN, *Phys. Rev.*, 1947, **17**, p. 143.
[6] BORN et GREEN, *Nature*, 1947, **59**, p. 738.
[7] LANDAU, *J. de Physique, U. R. S. S.*, 1941, **5**, p. 71.
[8] F. BLOCH, HANSEN et PACKARD, 1946, **70**, p. 474.
[9] L. DE BROGLIE, *L'électron magnétique*, Paris, 1934.

RÉFRACTOMÉTRIE DE PRÉCISION. RÉFRACTION ET DISPERSION DE L'EAU

Par J. DUCLAUX et V. BRICOUT.
Collège de France.

Sommaire. — On a cherché, en vue d'applications à la Chimie biologique, à augmenter la précision des mesures d'indice de réfraction par la méthode du prisme, de manière à obtenir la sixième décimale sur la dispersion ou sur les différences entre l'indice d'une solution et celui du solvant. La discussion des résultats montre un écart moyen de 1 à 1,2 unité du sixième ordre du jaune au bleu, double pour le violet. La variation thermique de l'indice de l'eau entre 8 et 25° a été déterminée, ainsi que sa dispersion. La méthode du prisme donne la même précision que l'interféromètre, ou même une précision plus grande pour de petites différences.

1. La mesure des indices de réfraction, et surtout des dispersions, pourrait trouver des applications nouvelles, notamment en Biochimie, si la précision habituelle des mesures pouvait être multipliée par 10. Certains phénomènes échappent si l'on s'arrête, comme on le fait en général, à la quatrième décimale; ils apparaissent si l'on pousse jusqu'à la cinquième, mais ils ne deviennent réellement mesurables qu'avec la sixième. Nous nous sommes, en conséquence, proposé d'obtenir la sixième décimale, non pas pour la mesure absolue de l'indice, mais pour les différences entre les indices de deux solutions et pour les dispersions. Dans ce qui suit, il sera uniquement question de cette réfractométrie différentielle.

2. **Méthode**. — La méthode employée est celle du prisme à liquide, appliquée dans des conditions particulières avec quelques précautions évidentes. Pour arriver à la sixième décimale, il suffit de soigner les détails. L'appareil est un goniomètre de construction robuste; le collimateur a une distance focale de 50 cm et la lunette une distance focale de 73 cm avec une ouverture de 55 mm. Le prisme, en bronze doré, est à 60° et il est fermé par des glaces à faces exactement parallèles. Ce prisme n'est pas proportionné au reste de l'appareil et en limite la précision, car il a seulement 30 mm d'ouverture utile et les images sont élargies par la diffraction.

Pendant la mesure, le collimateur, le prisme et la lunette restent fixes, dans la position du minimum de déviation pour la raie verte du mercure qui est la raie de référence. Les différences d'indice sont mesurées par un oculaire micrométrique porté par la lunette. Une table, établie une fois pour toutes par le calcul, fait correspondre chaque position du micromètre avec un indice. Pour établir cette table, il suffit de connaître l'angle du prisme et l'indice absolu de l'eau pour une raie spectrale connue, avec la position correspondante du micromètre. Nous avons admis le chiffre 1 333 000 pour la raie D à 20°; l'erreur possible sur ce chiffre ou sur l'angle du prisme n'affecte en rien les résultats.

La principale différence avec la méthode courante est la suppression de la fente du collimateur, qui est remplacée par une division au 1/10e de millimètre empruntée à un oculaire de microscope. Nous appellerons cette division le *micromètre objectif*. Elle forme son image dans le plan focal de la lunette, et l'opérateur pointe le trait central et cinq traits à droite et à gauche. Le pointé est répété deux fois, de + 5 à — 5 et ensuite en sens inverse. De cette manière, on obtient, en moins de 10 minutes 22 mesures indépendantes.

Le micromètre oculaire est un bifilaire à écartement de 50 μ. L'image de chaque trait du micromètre objectif est encadrée entre les deux fils. Bien que cette image soit élargie par la diffraction, l'encadrement se fait très bien pour tous les rayons du rouge au bleu. Pour la raie violette du mercure, la visibilité est moins bonne, l'encadrement demande une grande attention et la précision est diminuée. En plus, des erreurs d'appréciation peuvent se produire.

L'oculaire micrométrique a, suivant les cas, une distance focale de 30, 20 et 11 mm, assurant à la lunette les grossissements 24, 37 et 66. C'est le plus fort grossissement qui donne les résultats les meilleurs, le manque de lumière étant plus que compensé par l'augmentation des diamètres apparents.

Pour mettre le prisme au minimum de déviation, il serait illusoire de vouloir employer la méthode ordinaire consistant à suivre les images dans la lunette en faisant en même temps tourner le prisme. On pourrait faire de cette manière une erreur de 10 minutes, qui entraînerait une erreur de 0,18 pour 100 sur les dispersions. Pour avoir la position exacte

on amène le prisme dans une série de positions repérées sur un cercle divisé, en suivant les images au micromètre. Les lectures micrométriques portées en diagramme contre les angles de position du prisme dessinent une parabole dont le sommet est défini à 1 minute près.

La distance focale de la lunette doit être exactement connue en fonction du pas de la vis micrométrique de l'oculaire. La mesure se fait en faisant tourner le collimateur d'un angle connu et suivant au micromètre le déplacement de son image. Cette opération demande beaucoup de soin à cause de la petitesse des grandeurs à mesurer. Nous l'avons répétée deux fois, par deux procédés différents, et en faisant intervenir diverses régions du cercle divisé qui donne les angles de rotation. Les résultats sont :

Première série......	732,2 mm
Deuxième série.....	732,4

L'accord entre les nombres est fortuit, car nous ne pensons pas avoir obtenu une précision beaucoup plus grande que 1/1000e. Les autres mesures étant plus précises, les valeurs relatives des dispersions sont plus exactes que les valeurs absolues.

Quand l'appareil est monté et réglé, on ne doit y toucher que pour tourner la vis du micromètre oculaire. Une unité de la sixième décimale correspond à un déplacement latéral de 1 μ dans le plan focal de la lunette, à 80 cm de l'axe général de l'appareil. Celui-ci est garanti par des écrans contre tout rayonnement extérieur. L'emploi d'une salle à température constante faciliterait beaucoup les mesures. Cependant, même dans des conditions médiocres, le réglage à 1 μ près se maintient assez longtemps.

3. **Achromatisme.** — La méthode admet implicitement que le système optique est achromatique, car les images des différentes couleurs doivent se former dans le plan focal de la lunette, la condition d'indéformabilité de l'appareil interdisant de modifier, dans le cours des mesures, la position de ce plan focal (par exemple en changeant le tirage de l'oculaire). Nous avons pu disposer d'un excellent objectif construit par la Société « Optique et Précision » de Levallois. Aucune modification du tirage n'est nécessaire du jaune au violet. Mais il doit être changé pour le rouge, et nous n'avons pas fait de mesures en rouge. La suppression de cette couleur a moins d'inconvénient que celle de n'importe quelle autre, la dispersion y étant plus faible et moins caractéristique. Il y aurait cependant avantage à remplacer les objectifs par des miroirs concaves.

4. **Température.** — Pour l'eau et les solutions aqueuses diluées, une variation de température de 0°,01 amène une variation d'indice de 0,000 000 7 à 15°; il faut donc connaître la température au centième de degré.

Bien que l'emploi d'une circulation thermostatique puisse présenter des avantages, elle introduirait une complication telle que nous y avons renoncé. Nous n'avons fait aucun effort pour maintenir l'appareil à une température déterminée. Les mesures se font dans une salle dépourvue de tout aménagement spécial et à température constamment variable.

Le prisme est creusé d'un trou borgne dans lequel plonge un thermomètre au mercure divisé en 1/10e et lu à 0°,005 près. Au cours d'une série de 22 lectures dont la durée est 8-10 minutes, la température varie de quelques centièmes de degré. Une variation de 0°,04 n'est pas gênante; on peut prendre la moyenne comme température réelle. Des variations de 0°,1 ou plus sont à éviter; cependant, nous n'avons pas constaté qu'elles introduisent des erreurs évidentes et même les mesures faites par une température fixe ne sont pas meilleures que les autres. La prudence commande cependant de ne pas opérer aux heures où la température varie le plus.

La pièce essentielle de l'appareil est l'oculaire micrométrique qui ne doit pas comporter d'erreurs de 1 μ. Celui dont nous disposions était, à cet égard, imparfait et a donné de temps à autre des nombres aberrants dont nous n'avons pu reconnaître l'origine que tout à la fin.

5. **Corrections.** — L'indice de l'eau étant exprimé, suivant l'usage, par rapport à l'air à la même température, sous la pression normale, la pression de l'air et sa température doivent être connus. La pression est lue à 0,5 mm près, ce qui correspond à 2,5 unités du septième ordre décimal. La température est lue à 0°,1 près (1,3 unité du septième ordre).

Nous ne faisons pas de correction pour la vapeur d'eau et l'acide carbonique atmosphérique. Le calcul montre que les variations journalières peuvent difficilement affecter la sixième décimale; cependant, d'une saison à l'autre, il serait nécessaire d'en tenir compte. La compressibilité de l'eau est également négligeable, si les variations de pression ne dépassent pas 30 mm de mercure.

6. **Précision atteinte.** — La discussion d'un grand nombre de séries montre que l'erreur moyenne d'une lecture est 2-3 unités du sixième ordre du rouge au bleu et à peu près double pour la raie violette du mercure. On peut donc s'attendre avec 22 lectures, toutes corrections faites, à une précision de 0,000 002 pour le violet et 0,000 001 pour les autres couleurs.

7. Indice de réfraction de l'eau (¹). — Ayant en vue l'étude des solutions aqueuses, nous devions, avant tout, nous préoccuper d'obtenir des valeurs exactes de l'indice de réfraction de l'eau et de sa dispersion aux diverses températures intervenant en pratique. Nous avons profité pour cela des variations de température diurnes et saisonnières qui nous ont permis d'opérer en été entre 15 et 25°; en hiver entre 8 et 17°. Du commencement à la fin des mesures, l'appareil n'est pas touché; on compte sur sa stabilité, et l'on fait une ou plusieurs séries de mesures chaque fois que la température a atteint un degré convenable.

Entre 17° et 25°, les mesures sont très bien représentées, pour la raie jaune de l'hélium, par la formule

$$n_t = n_{20} - 0{,}000\,086\,3\ (t - 20°) - 0{,}000\,002\,07(t - 20°)^2 \quad (1)$$

qui donne comme écart moyen, avec 19 chiffres expérimentaux 0,000 001 2. Cette formule donne un maximum de l'indice à —0°,8. Si l'on admet, pour 20°, la valeur 1,333 000 qui est très approchée, on obtient par cette formule, pour les autres températures,

17°...	1,333 240 3	22°...	1,332 819 1
18 ...	1,333 164 3	23 ...	1,332 722 5
19 ...	1,333 084 2	24 ...	1,332 621 7
20 ...	1,333 000 0	25 ...	1,332 516 8
21 ...	1,332 911 6		

Les températures sont celles du thermomètre à mercure en verre dur ramené à l'échelle normale à 0° et au point de transformation du sulfate de soude (32°,383).

Entre 8 et 17°, pour la raie verte du mercure, les nombres sont bien représentés, dans la même échelle de températures, par la formule

$$n_t = n_0 - 0{,}000\,005\,675\,t - 0{,}000\,002\,175\,t^2 \quad (2)$$

qui donne avec 21 chiffres expérimentaux un écart moyen 0,000 001 1. La stabilité de l'appareil est remarquable, car cette série de mesures a duré 14 jours. D'après cette formule, le maximum d'indice serait à — 1°,3 pour le vert. La différence avec le maximum trouvé pour le jaune (— 0°,8) n'est pas significative.

8. Comparaison avec les valeurs antérieures. — Ces valeurs sont discordantes, bien qu'elles ne soient données qu'avec cinq décimales. Les plus précises paraissent être celles de Jasse (²) qui sont données comme comportant une erreur possible de 0,000 002. Pour représenter le mieux possible les nombres de Jasse, il faut admettre pour valeur de l'indice de réfraction à 0° (raie 5460 du mercure) le chiffre 1,335 445 8. On peut alors former le table au suivant :

	D. et B.	Jasse.	
7°,88.....	1,335 266	1,335 269	—3
8,52.....	1,335 240	1,335 241	—1
8,85.....	1,335 225	1,335 230	—5
9,15.....	1,335 212	1,335 211	+1
9,44.....	1,335 198	1,335 198	0
9,65.....	1,335 188	1,335 185	+3
14,06.....	1,334 936	1,334 933	+3
15,00.....	1,334 871	1,334 868	+3
15,24.....	1,334 854	1,334 856	—2
15,96.....	1,334 801	1,334 800	+1

La concordance est très bonne. Il ne semble pas que l'interféromètre donne un meilleur résultat que le prisme.

9. Dispersion de l'eau. — Pour essayer notre méthode nous avons mesuré la dispersion de l'eau dans le spectre visible. Deux séries de mesures ont été faites, indépendantes l'une de l'autre, avec un nouveau réglage avant la seconde. Les résultats sont :

		I.	II.
Dispersion	5875 (He)-5015 (He)..	0,003 325 3	0,003 321 7
»	5460 (Hg)-4861 (H)...	0,002 658 4	0,002 660 4
»	5460 (Hg)-5015 (He)..	–	0,001 885 0
»	5460 (Hg)-4358 (Hg)..	0,005 764	0,005 754

La seconde série étant meilleure que la première, les chiffres les plus probables sont :

5875-5015......	0,003 322	vers 12°
5460-4861......	0,002 660	»
5460-5015......	0,001 885	»
5460-4358......	0,005 757	»

Pour l'intervalle 5460-4358, on déduit des nombres de Jasse, à la même température, la moyenne 0,005 762 qui ne diffère de la nôtre que de 1/1100ᵉ; l'accord est très bon puisque notre chiffre fait intervenir la distance focale de la lunette qui n'est pas connue à beaucoup mieux que 1/1000ᵉ.

D'autre part, des mesures interférométriques ont été faites par Kruis (³). Ramenées aux mêmes conditions que les nôtres, elles donnent pour une température de 25° :

5875-5015.......	0,003 329
5460-4861.......	0,002 663
5460-5015.......	0,001 890
5460-4358.......	0,005 757

La différence moyenne avec nos chiffres est 0,000 004; Kruis pense pouvoir garantir 0,000 003

(¹) Les chiffres donnés ici corrigent ceux d'un premier travail (*C. R. Acad. Sc.*, 1944, **219**, p. 199).

(²) *C. R. Acad. Sc.*, 1934, **198**, p. 163.

(³) *Z. physik. Chem.*, 1936, B **34**, p. 13.

sur un indice, donc 0,000 004 sur une dispersion. Nos chiffres sont sans doute plus exacts, puisque la dispersion est mesurée directement.

Nous n'avons pas trouvé de différence dans la dispersion entre 8° et 17°. Une variation est certaine, mais nous n'avons pu la dégager.

Enfin, nous avons déterminé, avec un soin particulier, pour atteindre la limite de la précision possible, la dispersion de l'eau entre les deux raies jaunes du mercure 5770 et 5790. Trois séries de mesures indépendantes ont donné

0,000 0687 0,000 0693 0,000 0693 Moy. 0,000 0691

La moyenne est sans doute exacte à 3 unités du septième ordre; c'est ce chiffre qui exprime le mieux les possibilités de la méthode, les écarts plus grands étant attribuables à des causes d'erreur évitables. Ce n'est que si l'on voulait aller plus loin et atteindre l'unité de la septième décimale que de nouvelles difficultés apparaîtraient.

Manuscrit reçu le 3 juillet 1947.

SUR LA THERMODYNAMIQUE DE QUELQUES PROCESSUS IRRÉVERSIBLES
I. CORPS SIMPLES

Par S. R. de GROOT.

Laboratoire de Chimie nucléaire du Collège de France.

Sommaire. — La thermodynamique des processus irréversibles, basée sur les relations réciproques d'Onsager, est développée pour un corps simple, dans lequel il y a des transferts d'énergie et de matière et des actions réciproques entre ces transferts.

1. **Introduction.** — On sait que la thermodynamique dans sa forme usuelle ne traite que des processus réversibles. Le seul renseignement qu'elle puisse pratiquement fournir sur les phénomènes irréversibles est l'indication du sens dans lequel s'opère le processus. La plus grande partie de la thermodynamique existante est donc plutôt de la « thermostatique ».

Les lois régissant les phénomènes irréversibles, telles que la loi de Fourier sur la conduction de la chaleur, la loi de Fick sur la diffusion et la loi d'Ohm sur la conduction électrique, sont ordinairement déduites de considérations cinétiques *ad hoc* et ne font donc pas partie d'une théorie unique. Toutefois, on peut construire une théorie plus systématique, appelée à juste titre « thermodynamique », à partir de certaines relations très générales, dues à Onsager [1] et précisées en quelques points par Casimir [2]. On trouve alors des lois macroscopiques régissant les phénomènes irréversibles et les effets qui résultent de leur interaction [3], [4].

D'autre part, on connaissait déjà bien auparavant, des théories sur des processus irréversibles particuliers. Elles cherchent à appliquer les principes de la thermostatique à une partie du phénomène censée être réversible, tandis qu'une autre partie du processus n'est pas prise en considération. Quoiqu'une telle méthode ne soit pas du tout justifiable, on trouve parfois des résultats, qui sont en accord avec l'expérience. L'exemple classique d'une pareille théorie, que je désignerai sous le nom de « quasi-thermostatique », est celle de la théorie de la thermoélectricité de Thomson.

Or, la théorie « thermodynamique » (utilisant donc les relations d'Onsager) aboutit toujours au même résultat que les quasi-thermostatiques dans les cas où celui-ci est confirmé par l'expérience. La théorie « thermodynamique », permet donc de justifier ou invalider les formules déduites dans les quasi-thermostatiques.

Je veux développer ici la « thermodynamique » de quelques processus irréversibles qui s'opèrent dans un corps simple et dans un mémoire suivant le cas d'un mélange de corps chimiques. On retrouve, d'une manière simple, des résultats, connus expérimentalement et trouvés par certaines théories quasi-thermostatiques, ce qui n'est pas toujours le cas dans d'autres théories thermodynamiques.

2. **Les relations d'Onsager.** — Les phénomènes

irréversibles s'expriment, en première approximation, par des relations phénoménologiques du type général :

$$J_i = \sum_k L_{ik} X_k, \tag{1}$$

où les grandeurs J_i sont appelées des « flux » — flux de matière, d'électricité, d'énergie, etc. — les grandeurs X_i des « forces » — gradient de concentration, de potentiel, de température, etc. — et où les facteurs L_{ik} sont certains coefficients comme le coefficient de diffusion, la conductibilité électrique ou calorifique, etc.

Introduisons maintenant les relations d'Onsager. Pour cela, remarquons que toutes les équations de mouvement mécanique — classiques et quantiques — contiennent une symétrie par rapport au temps t, c'est-à-dire qu'elles sont invariantes pour la transformation $t \to -t$. Or, Onsager a trouvé que cette propriété de réversibilité microscopique impliquait la symétrie du tenseur des coefficients phénoménologiques

$$L_{ik} = L_{ki}, \tag{2}$$

à condition qu'on choisisse de la manière suivante les grandeurs J_i et X_i. Soient, dans un système isolé adiabatiquement, α_1, α_2, ... les paramètres qui décrivent les déviations de l'état d'équilibre thermostatique. La variation de l'entropie (la source d'entropie) peut s'écrire alors

$$\Delta S = -\frac{1}{2} \sum_{i,k} g_{ik} \alpha_i \alpha_k. \tag{3}$$

Introduisons comme « forces » les combinaisons linéaires suivantes des paramètres

$$X_i = \frac{\partial(\Delta S)}{\partial \alpha_i} = -\sum_k g_{ik} \alpha_k \tag{4}$$

et comme flux

$$J_i = \dot{\alpha}_i, \tag{5}$$

où $\dot{\alpha}_i$ ne représente pas strictement une dérivée, mais un quotient de différences

$$\dot{\alpha}_i = \frac{\alpha_i(t+\tau) - \alpha(t)}{\tau}, \tag{6}$$

où $\tau \gg \tau_0$ avec τ_0 l'intervalle de temps entre deux chocs moléculaires, mais $\tau \ll \tau_r$, où τ_r est le temps de régression macroscopique dans le système. Alors on a, pour la dérivée temporelle de l'entropie,

$$\dot{\Delta S} = -\sum_{i,k} g_{ik} \dot{\alpha}_i \alpha_k = \sum_i J_i X_i. \tag{7}$$

Il reste encore une certaine liberté dans le choix des paramètres J_i et X_i.

La théorie thermodynamique basée sur les relations d'Onsager consiste donc à trouver d'abord les paramètres conjugués J_i et X_i de (7), par exemple en calculant les fluctuations (3) d'un système et, ensuite, à étudier les équations phénoménologiques (1) avec les relations (2), qui sont valables pour des valeurs *arbitraires* des forces X_i (ou des paramètres). Avant d'appliquer ce programme à quelques cas particuliers, je veux encore faire quelques remarques sur la théorie d'Onsager.

Les relations réciproques (2) entre phénomènes irréversibles peuvent être considérées comme des propriétés macroscopiques parce qu'elles ne contiennent que des grandeurs macroscopiques. Elles ne peuvent toutefois pas être déduites de considérations macroscopiques de symétrie du système envisagé, parce qu'elles dépendent de la propriété de réversibilité microscopique. Dans sa démonstration, Onsager applique la mécanique statistique aux fluctuations que subit un système « âgé », c'est-à-dire normalement en équilibre. A l'aide des fluctuations on trouve un rapport entre les propriétés macroscopiques et statistiques sans utiliser une équation de transport reposant sur le choix d'un modèle spécial. Si l'on admet que les régressions des fluctuations spontanées sont en moyenne gouvernées par les lois régissant les phénomènes macroscopiques, les relations d'Onsager (2) peuvent être déduites du principe de la réversibilité microscopique. Cette dernière hypothèse (qui n'est pas tout à fait évidente) permet de se passer d'une théorie cinétique précise, renfermant les équations de transport des phénomènes. L'utilisation de la même équation phénoménologique (1) avec (5), (6), (4) pour α_i petits et grands n'est justifiée que si l'équation de transport des problèmes envisagés est linéaire et donc valable aussi bien pour des α_i grands que petits [2].

3. **Les paramètres conjugués.** — Considérons un corps simple dans un récipient adiabatiquement isolé, qui a deux parties. On calcule très rapidement des paramètres conjugués J_i et X_i en choisissant comme paramètres α_i décrivant les fluctuations, les changements d'énergie ΔU_1 et ΔU_2 et de masse ΔM_1 et ΔM_2 des deux parties du récipient. Comme l'énergie et la masse totales du système isolé sont constantes, on a

$$\Delta U_1 + \Delta U_2 = 0, \tag{8}$$

$$\Delta M_1 + \Delta M_2 = 0. \tag{9}$$

La variation de l'entropie de la première partie du système est

$$\Delta S_1 = \left(\frac{\partial S}{\partial U}\right)_M \Delta U_1 + \left(\frac{\partial S}{\partial M}\right)_U \Delta M_1 + \frac{1}{2}\left(\frac{\partial^2 S}{\partial U^2}\right)_M (\Delta U_1)^2 + \frac{\partial^2 S}{\partial U\,\partial M} \Delta U_1 \,\Delta M_1 + \frac{1}{2}\left(\frac{\partial^2 S}{\partial M^2}\right)_U (\Delta M_1)^2 + \dots \tag{10}$$

et pour la seconde partie une expression ΔS_2 semblable avec indices 2. Pour la variation totale

$$2\,\Delta S = \Delta S_1 + \Delta S_2$$

d'une masse $2M$ on a donc, grâce à (8) et (9) avec

$$\Delta U = \Delta U_1 = -\Delta U_2 \quad \text{et} \quad \Delta M = \Delta M_1 = -\Delta M_2 :$$

$$\Delta S = \frac{1}{2}\left(\frac{\partial^2 S}{\partial U^2}\right)_M (\Delta U)^2 + \frac{\partial^2 S}{\partial U\,\partial M}\Delta U\,\Delta M + \frac{1}{2}\left(\frac{\partial^2 S}{\partial M^2}\right)_U (\Delta M)^2 + \ldots \quad (11)$$

et, par conséquent, pour la dérivée temporelle

$$\dot{\Delta S} = \dot{\Delta U}\left\{\left(\frac{\partial^2 S}{\partial U^2}\right)_M \Delta U + \frac{\partial^2 S}{\partial U\,\partial M}\Delta M\right\} + \dot{\Delta M}\left\{\frac{\partial^2 S}{\partial U\,\partial M}\Delta U + \frac{\partial^2 S}{\partial M^2}\Delta M\right\} = \dot{\Delta U}\,\Delta\left(\frac{\partial S}{\partial U}\right)_M + \dot{\Delta M}\,\Delta\left(\frac{\partial S}{\partial M}\right)_U. \quad (12)$$

Quand on choisit comme « flux » le courant d'énergie

$$J_u \equiv \dot{\Delta U} \quad (13)$$

et le courant de matière

$$J_1 \equiv \dot{\Delta M}, \quad (^1). \quad (14)$$

l'équation (12) peut être écrite

$$\dot{\Delta S} = J_u X_u + J_1 X_1 \quad (15)$$

avec les « forces » X_u et X_1, correspondant aux « flux ». Pour calculer ces « forces », utilisons la relation

$$T\,\mathrm{d}S = \mathrm{d}U - \mu\,\mathrm{d}M, \quad (16)$$

(μ = potentiel chimique = potentiel thermodynamique molaire partiel), valable pour un corps simple dans un récipient à volume constant, qui fournit

$$\left(\frac{\partial S}{\partial U}\right)_M = \frac{1}{T} \quad (17)$$

et

$$\left(\frac{\partial S}{\partial M}\right)_U = -\frac{\mu}{T}. \quad (18)$$

Donc les « forces » sont, à cause de (12) et (15)

$$X_u \equiv \Delta\left(\frac{\partial S}{\partial U}\right)_M = \Delta\left(\frac{1}{T}\right) = -\frac{\Delta T}{T^2} \quad (19)$$

et

$$X_1 \equiv \Delta\left(\frac{\partial S}{\partial M}\right)_U = -\Delta\left(\frac{\mu}{T}\right) = -\frac{\Delta\mu}{T} + \mu\frac{\Delta T}{T^2} = -v\frac{\Delta p}{T} + w\frac{\Delta T}{T^2} \quad (20)$$

avec $w = \mu + T.s$, l'enthalpie molaire partielle et s l'entropie molaire partielle ($\Delta\mu = v\,\Delta p - s\,\Delta T$) et v le volume molaire partiel.

4. **Les équations phénoménologiques.** — Les relations phénoménologiques (1) s'écrivent, pour le cas envisagé

$$J_1 = a X_1 + b X_u, \quad (21)$$

$$J_u = b X_1 + c X_u, \quad (22)$$

si l'on met

$$L_{11} = a, \qquad L_{22} = c \qquad \text{et} \qquad L_{12} = L_{21} = b.$$

Avec (19) et (20), les équations (21) et (22) deviennent

$$J_1 = -\frac{av}{T}\Delta p + \frac{aw - b}{T^2}\Delta T, \quad (23)$$

$$J_u = -\frac{bv}{T}\Delta p + \frac{bw - c}{T^2}\Delta T. \quad (24)$$

On peut introduire une grandeur Q définie par

$$Q \equiv \frac{b}{a} \quad (25)$$

dont la signification physique apparaît quand on soustrait l'équation (22) de (21), multiplié par Q :

$$J_u = QJ_1 + (c - bQ)X_u. \quad (26)$$

Pour l'état de température uniforme ($X_u = 0$), on a

$$J_u = QJ_1 \quad (27)$$

et Q a donc la signification d'une énergie, transportée avec l'unité de masse (c'est-à-dire quand $J_1 = 1$). Faisons encore remarquer que cette interprétation physique de Q est une suite de (26) et donc de la relation d'Onsager $L_{12} = L_{21} = b$. On pourrait appeler Q une « énergie ou chaleur de transport », mais cette expression est déjà attachée à la notion

$$Q^* = Q - w. \quad (28)$$

Quand l'unité de masse est déplacée de la partie I (avec température T) à la partie II (avec température $T + \mathrm{d}T$) d'un système, la pression étant uniforme, Q^* est la chaleur absorbée par I et fournie par II, de sorte que les températures de I et II conservent leurs valeurs initiales.

Une notion très importante en thermodynamique des processus irréversibles est « l'état stationnaire » ou situation dans laquelle le système envisagé n'échange que de la chaleur avec l'extérieur et où les variables du système ne dépendent plus du temps. Ces variables (par exemple concentrations, pression, température) peuvent d'ailleurs très bien dépendre des coordonnées d'espace (si l'on exigeait que les paramètres soient en outre uniformes dans l'espace, on retomberait sur un équilibre thermosta-

(1) Comme je n'étudierai ici que des problèmes à une dimension, les grandeurs J_u et J_1 sont bien des dérivées de paramètres qui décrivent les déviations par rapport à l'état d'équilibre. Dans les cas de plusieurs dimensions, la théorie d'Onsager doit être modifiée suivant la méthode de Casimir [2].

tique). A l'état stationnaire, on a donc

$$J_1 = 0, \quad \text{mais} \quad J_u \neq 0. \tag{29}$$

L'équation (23) donne, pour l'état stationnaire, la formule importante

$$\frac{\Delta p}{\Delta T} = -\frac{Q^\star}{vT}, \tag{30}$$

grâce à l'introduction de (25) et (28). La formule (30) a été déduite de la quasi-thermostatique (et donc de façon erronée) par C. Wagner et H. London [5] et de la thermodynamique pour le cas d'un gaz idéal par Casimir [2].

La formule (26) permet de trouver une autre application intéressante. Pour l'état stationnaire

$$J_u = (c - bQ)X_u. \tag{31}$$

On voit que la grandeur Q joue un rôle dans la conductibilité de la chaleur. A l'état stationnaire, il y a eu migration de matière de sorte que la pression n'est plus uniforme. On pourrait se demander quelle est la conduction de la chaleur à l'état initial du système, c'est-à-dire aussitôt après l'établissement du gradient de température quand le gradient de la pression est encore nul. Alors (24) donne, avec (19),

$$J_u = (c - bw)X_u. \tag{32}$$

Le coefficient de conduction de la chaleur de (32) contient w au lieu de Q. Les coefficients de (31) et (32) sont équivalents quand $w = Q$ ou $Q^\star = 0$ (28).

5. **Cas particuliers.** — Si l'on veut appliquer la formule générale (30) de l'état stationnaire à un cas particulier, il faut déborder le cadre de la thermodynamique en calculant, à l'aide d'une théorie cinétique pour chaque cas, la chaleur de transport $Q^\star$ (qui n'est pas une simple fonction d'état de la thermostatique).

Pour un gaz idéal contenu dans deux vases communiquant par des trous qui sont petits par rapport au libre parcours moyen (gaz de Knudsen), on a

$$Q = 2RT \tag{33}$$

et

$$Q^\star = Q - w = \left(2 - \frac{5}{2}\right)RT = -\frac{1}{2}RT. \tag{34}$$

Avec $v = \frac{RT}{p}$, l'équation (30) devient maintenant l'expression bien connue de la pression thermomoléculaire

$$\frac{p}{\sqrt{T}} = \text{const.} \tag{35}$$

Si l'on suppose, au contraire, que les trous entre les deux récipients sont grands, la chaleur de transport est

$$Q = w = \frac{5}{2}RT, \tag{36}$$

$$Q^\star = Q - w = 0 \tag{37}$$

et donc, suivant (30):

$$p = \text{const.}$$

Pour d'autres corps, il faut encore utiliser d'autres images physiques [6] pour trouver Q.

Manuscrit reçu le 7 juillet 1947.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] L. Onsager, *Phys. Rev.*, 1931, **37**, p. 405; 1931, **38**, p. 2265.

[2] H. B. G. Casimir, *Rev. Mod. Phys.*, 1945, **17**, p. 343 (ou *Philips Res. Rep.*, 1946, **1**, p. 185).

[3] C. Eckart, *Phys. Rev.*, 1940, **58**, p. 267, 269, 919, 924. — J. Meixner, *Ann. Physik*, 1941, [V], **39**, p. 333; 1942, [V], **41**, p. 409; 1943, [V], **43**, p. 244; *Z. phys. Chem.*, 1943, B, **53**, p. 235.

[4] S. R. de Groot, L'effet Soret, diffusion thermique dans les phases condensées. *Thèse*, Amsterdam, 1945 (*voir* aussi cette publication pour comparaison de la thermodynamique des processus irréversibles avec les théories quasi-thermostatiques et avec l'expérience).

[5] C. Wagner, *Ann. Physik*, 1929, [V] **3**, p. 627; 1930, [V], **6**, p. 370. — H. London, *Proc. Roy. Soc.*, London, 1939, **171**, A, p. 484.

[6] S. R. de Groot, *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1947, **225**, p. 173, sur l'hélium II.

INTERFÉROMÈTRE POUR MICROONDES HERTZIENNES

Par Théo KAHAN.

Sommaire. — On décrit un appareil interférentiel pour la mesure des longueurs d'ondes électromagnétiques pour des fréquences de l'ordre de 10 000 Mc : s.

J'ai utilisé avec succès pour la mesure des longueurs d'ondes dans la bande d'ondes hertziennes de 3 cm un ondemètre qui rappelle l'interféromètre Michelson.

Il est constitué par deux tronçons de guide d'ondes AM'B et CN'D de section rectangulaire (30 × 10 mm) en laiton soudés en leur milieu MN de façon à former (disposition en croix)

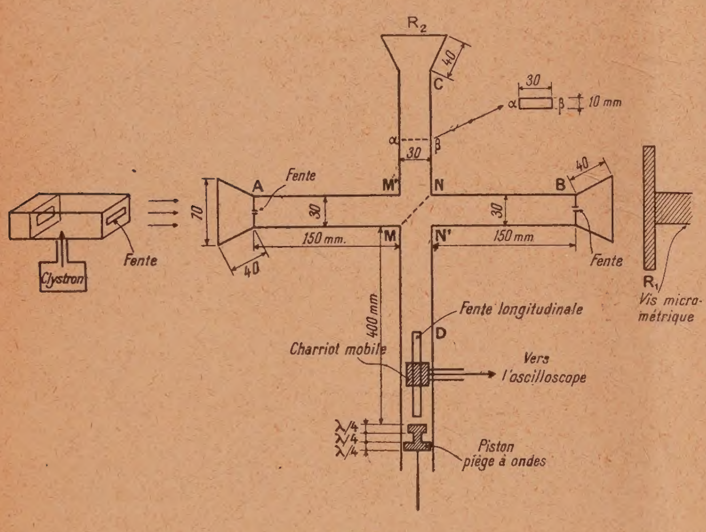


Fig. 1.

les quatre bras de l'interféromètre. Le guide d'ondes AB est muni à chacune de ses extrémités d'un cornet électrique afin d'assurer une bonne concentration du faisceau hertzien polarisé linéairement. Le générateur de microondes, clystron de 3 cm, débite dans un guide dont l'embouchure s'ouvre en face de l'entrée A. L'onde ainsi guidée frappe au point de croisement MN une plaque de trolitul mince munie d'une nappe de dipôles formés de brins parallèles et qui joue le rôle de la lame semi-argentée de l'interféromètre Michelson. Une partie de l'onde incidente en MN est transmise vers B pour tomber sur le réflecteur mobile R_1 constitué par un disque métallique dont le mouvement est commandé par une vis micrométrique. Le faisceau renvoyé par ce réflecteur R_1 vient frapper à nouveau la plaque semi-transparente et est renvoyé dans le guide N'D où il se superpose à l'onde réfléchie d'abord par la nappe dipolaire vers le guide NC, ensuite par le réflecteur grillagé R_2 qui la renvoie en ND. L'interférence des deux ondes se produit en D. Au niveau D, l'onde interférentielle vient frapper un détecteur à cristal. En déplaçant le réflecteur R_1, on fait défiler le train d'ondes dans le récepteur. En modulant le générateur à 1000 p : s, j'ai pu suivre aisément le défilé des ventres et des nœuds à l'oscilloscope et mesurer ainsi la longueur d'onde avec une précision de quelques millièmes. Le réflecteur R_2 est constitué par une nappe circulaire de brins métalliques parallèles logée dans un cornet à section circulaire. En faisant tourner ce réflecteur (réflecteur à coefficient variable) autour de son axe de symétrie, j'ai pu doser à mon gré l'intensité de l'onde réfléchie et annuler de la sorte l'amplitude des nœuds. Le faisceau d'ondes émis par le clystron est polarisé linéairement et l'onde qui se propage dans l'interféromètre ainsi constitué est une onde du type TE_{01}.

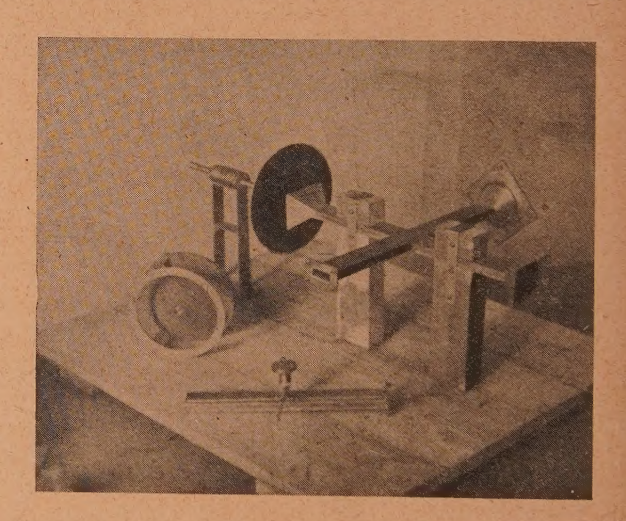


Fig. 2.

Afin d'éviter des réflexions parasites multiples, le guide récepteur est bouclé sur son impédance caractéristique (piston terminal à piège d'onde). Le détecteur à cristal monté sur chariot mobile pénètre dans ce guide à travers une fente longitudinale fine (*fig.* 1).

Il résulte de ce qui précède que cet interféromètre peut se prêter à la mesure du coefficient de réflexion du disque R_2 et, par conséquent, aussi à la mesure de l'impédance terminale dans la gamme des hyperfréquences hertziennes.

Manuscrit reçu le 20 septembre 1947.

Le Gérant : Maurice Blondin. 127018 Imp. Gauthier-Villars, 55, quai des Grands-Augustins, Paris. — 1947.